MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE TECHNOLOGIE MOHAMED BOUDHIAF ORAN
FACULTE DE GENIE ELECTRIQUE

DEPARTEMENT D'ELECTROTECHNIQUE

THESE

Présentée par :

BENYOUCEF Djilali

En vue de l'obtention du diplôme de

Docteur èS Sciences

En : *Génie électrique*
Option : *Décharge Electrique et Haute Tension*

Sujet :

MODELISATION PARTICULAIRE ET MULTIDIMENSIONNELLE DES PLASMAS REACTIFS CREES PAR DECHARGE ELECTRIQUE HORS EQUILIBRE

Soutenue le :29/06/2011, devant le jury composé de :

S.	FLAZI	Professeur	UST Oran	Président
A.	HENNAD	Professeur	UST Oran	Examinateur
A.	TILMATINE	Professeur	U/ Sidi-Bel-Abbes	Examinateur
D.	MAHI	Professeur	U/ Laghouat	Examinateur
B.	BELMADANI	Professeur	UHB Chlef	Directeur de Thèse
A.	SETTAOUTI	Professeur	UST Oran	Co-directeur de Thèse

Remerciements

Une thèse est rarement le travail d'une seule personne isolée. Elle résulte d'un environnement et d'un soutien fourni directement par un groupe de recherche et indirectement par diverses personnes. Maintenant que je les connais, je suis très heureux de remercier dans ce qui suit celles et ceux qui ont contribués à la réalisation de ce travail.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements à monsieur Bachir Belmadani, qui m'a formé et accompagné tout au long de ces années avec beaucoup de patience et de pédagogie. Je tiens à remercier aussi monsieur Abderrahmane Settaouti pour les conseils judicieux qu'il a su m'apporter durant ces années de thèse.

J'adresse mes sincères remerciements aux autres membres du jury cités par ordre alphabétique S. Flazi, A. Hennad, D.Mahi et A.Tilmatine. Je les remercie pour avoir examiné et rapporté sur mon manuscrit et également pour l'intérêt qu'il porté à mon travail de recherche et la richesse de la discussion pendant la soutenance de cette thèse.

Un grand merci à tout le personnel technique et administratif du laboratoire de LAPLACE pour leur aide et leur cordialité. Je tiens tout particulièrement à exprimer mes remerciements aux membres du groupe PRHE et aussi le personnel de l'Université de Chlef et l'université de d'Oran en Algérie et spécialement les deux départements d'électrotechniques.

Enfin, je souhaite remercier tous mes amis ainsi que ma famille en particulier mes parents, mes frères, mes sœurs, mon petit fils Firas et surtout ma femme pour sa patience et les sacrifices qu'elle a consentis pendant la préparation de la thèse.

Djilali Benyoucef, Chlef, Juin 2011

Résumé

La modélisation des décharges électrique hors équilibre dans le domaine des basses pressions peut être effectuée à l'aide de modèles classiques de type continue ou fluide couplant l'action du transport des particules chargées et celle du champ. Ceci permet une étude électro-hydrodynamique et énergétique du plasma réactif sans tenir compte de l'aspect discontinue ou particulaire. Pour éviter cette approximation fluide incorrecte à basse pression, l'utilisation de modèles de type particulaire est l'alternative qui permet rigoureusement l'étude énergétique et cinétique du plasma réactif à l'échelle du libre parcours des interactions entre les particules chargées et le gaz par résolution de l'équation de Boltzmann ; soit directement soit indirectement en utilisant des techniques de Monte Carlo. Le premier objectif de cette thèse est de développer un modèle de type particulaire en géométrie multidimensionnelle pour l'étude énergétique et cinétique d'un plasma réactif à basse pression utilisé dans les applications micro et nano électroniques. Le modèle est basé sur l'utilisation de techniques Monte Carlo optimisées (traitement des collisions par la méthode de vol libre et libre parcours) pour le transport des électrons et des ions dans le gaz tout en tenant compte de l'action du champ de charges d'espace. Afin d'exploiter pleinement l'aspect prédictif d'un tel modèle particulaire, la validation du modèle par comparaison avec des données expérimentales est aussi un objectif permanent de cette thèse. La thèse est commencée par une étude bibliographique très poussée sur les plasmas réactifs de décharge. Le modèle développé est appliqué à une configuration cylindrique avec des électrodes planes et parallèles et une configuration unidimensionnelle, la production de décharge dans l'argon, l'oxygène et le mélanges argon-oxygène pour différentes pressions partielles, à une fréquence fixe (13,56 MHz), pour une gamme de pressions entre 50 et 100 mTorr. Cependant, à cause des contraintes liées aux applications industrielles qui nécessitent la décharge à très basse pression avec des densités un peu élevée. Nous avons ajouté l'effet du champ magnétique qui a le rôle de faire séjourner les électrons plus longtemps dans le réacteur plasma afin d'augmenter la densité du plasma.

Mots clés :

Décharge électrique hors équilibre, Plasmas réactifs basse pression, Modèle particulaire, techniques de Monte Carlo, méthode du temps de vol libre, méthode du libre parcours, argon, oxygène.

Abstract

The modelling of electrical discharges non-equilibrium in the area of low pressure can be performed using classical continuous models or fluid model, coupling the action of the charged particles transport and that of the field (self-consistent fluid model). This allows a study electro-hydrodynamic and energy of the reactive plasma without taking into consideration the discontinuous aspect or particulate.

To avoid this fluid incorrect approximation at low pressure, the particle model is the alternative that allows rigorous energy study and kinetics of reactive plasma at the wide of free path of interactions between the charged particles and the gas, by solving the Boltzmann equation; either directly or indirectly by using Monte Carlo techniques.

The first goal of this thesis is to develop a particles model in multidimensional geometry for kinetics and energy study for reactive plasma at low pressure used in micro and nano-electronics applications. The model is based on optimized Monte Carlo techniques (free path and free flight time) for the transport of electrons and ions in the gas taking into account the action of the space charge field. For fully exploit the predictive aspect of such a particle model, the model validation by comparison with experimental data is a permanent objective of this thesis. The thesis is begun by a very extensive literature study on the reactive plasma discharge. The model developed is applied to a cylindrical parallel-plate configuration and one dimensional configuration, producing discharges in argon, oxygen and argon-oxygen mixtures for different partial pressures, at fixed frequency (13.56 MHz) and for total pressure between 50 and 100 mTorr. However, because of constraints related to industrial applications that require very low pressure discharge with densities slightly higher, we added the effect of the magnetic field that has the role to make the electrons stay longer in the plasma reactor so as they increase the plasma density.

Key words:

Non-equilibrium electrical discharge, low pressure reactive plasmas, particle model, Monte Carlo techniques, free flight time method, free path method, argon, oxygen.

Notations

n_0^* : la densité des particules neutres excitées

n_0 : la densité des particules neutres

n_i^* : la densité des ions excitées

n_r : la densité des radicaux

n_s : la densité des particules de type s

τ_i : le taux d'ionisation

τ_d : le taux de dissociation

τ^* : le taux d'excitation

f_s : fonction de distribution des particules de type s

f_p : la fréquence du plasma

ω_p : pulsation du plasma

m_e : la masse d'électron

m_s : la masse de la particule de type s

μ_r : la masse réduite

ϕ : Flux de particules

k_B : constante du Boltzmann

T : Température

T_e : Température électronique

T_{rf}: période du cycle radiofréquence

t : temps

i_c : courant de conduction

i_D : courant de déplacement

C_B : capacité de blocage

λ_D : longueur de Debye

λ_l : longueur de Landau

λ_{vol} : le libre parcours

λ_{min}: le libre parcours minimal

ε : l'énergie de la particule

ε_p : l'énergie de la particule projectile

ε_c : l'énergie de la particule cible

α : le premier coefficient de Townsend

γ : le second coefficient de Townsend

α_B : la polarisabilité électrique de l'atome

V_{dc} : la tension d'auto polarisation

V_{rf} : tension radiofréquence

E : le champ électrique

B : le champ magnétique

q : la charge électrique

ω : la pulsation

a : l'accélération de la particule

m : la masse de particule

m_p : la masse de la particule projectile

m_p : la masse de la particule cible

v : la vitesse de la particule

v_p : la vitesse de la particule projectile

v_c : la vitesse de la particule cible

v_r : la vitesse relative entre la particule projectile et la particule cible

P_{eff} : la puissance effective couplée au plasma

ρ : le bilan de la densité de charge des particules chargées

σ_i : la section efficace de la collision de type i

σ_T : la section efficace totale de collision

θ : l'angle axial de vecteur vitesse dans le repère de laboratoire.

φ : l'angle azimutal de vecteur vitesse dans le repère de laboratoire.

χ : l'angle axial de vecteur vitesse dans le repère du centre de masse

ψ : l'angle azimutal de vecteur vitesse dans le repère du centre de masse

η : le facteur de perte d'énergie

Liste des Figures

Liste des Tableaux

INTRODUCTION GENERALE

Actuellement, les plasmas réactifs à basse pression sont largement utilisés dans l'industrie, telles que ; la gravure, le dépôt de couches minces, l'analyse de pureté, les lampes à décharge basse pression ou encore les écrans à plasma fonctionnent à l'aide de décharges luminescentes. Parallèlement. Beaucoup des travaux théoriques et expérimentaux ont été menés afin de mieux comprendre le comportement de ces décharges, ceci dans le but d'améliorer et d'optimiser les procédés qui les utilisent. Un certain nombre de ces applications sont directement reliées au comportement des ions et leurs énergies de bombardement à la cible. Par exemple, la gravure, le dépôt de couches minces (PVD) ou encore l'analyse de pureté reposent sur le processus de pulvérisation de surfaces dû au bombardement des ions de forte énergie. Dans ces dernières applications, la densité du plasma et le flux de bombardement ionique à la cible peuvent être augmentés, si on ajoute un champ magnétique perpendiculaire à l'axe de décharge. Les autres applications telles que les lampes à décharge ou encore la propulsion ionique pour satellites, le bombardement des ions est néfaste, car elle diminue la durée de vie du dispositif.

Pour les applications micro et nanoélectronique, la densité électronique est d'environ de 10^{8} cm^{-3} à 10^{12} cm^{-3}, le degré d'ionisation est d'environ de 10^{-6} à 10^{-3}, correspondant à des gaz faiblement ionisés, la pression est comprise entre quelques mTorr et quelques Torr. Pour former et maintenir ces décharges, une source électrique est nécessaire pour produire l'ionisation du gaz tampon. Le champ électrique agit directement sur les particules chargées seulement (les électrons et les ions) où l'énergie injectée est transférée principalement aux électrons, qui sont l'utilisés dans l'ionisation, recombinaison et de dissociation du gaz. Les propriétés de base du plasma sont contrôlées par la dynamique des particules chargées. Les sources électriques appliquées peuvent être continues, mais souvent sont en radiofréquence avec des tensions de 50V à 500 V et de 100 kHz à 100 MHz de fréquence.

Pour obtenir les espèces chimiques actives recherchées pour un objectif ou une tâche bien déterminée et un fonctionnement optimal. La modélisation est aujourd'hui considérée un outil pratique pour la conception et l'optimisation des installations expérimentales utilisées dans les procédés assisté par plasma.

L'objectif principal de cette thèse est de développer un modèle particulaire auto-cohérent d'une décharge réactive hors équilibre basant une sur une méthode de type Monte Carlo. Ce modèle nous permet d'éviter les approximations des modèles fluides qui sont incorrectes à basse pression. Ainsi, nous permet rigoureusement l'étude énergétique et cinétique du plasma réactif à l'échelle du libre parcours des interactions entre les particules chargées et le gaz.

Le contenu de cette thèse est réparti en quatre chapitres avec une introduction générale et une conclusion générale. Les chapitres sont organisés comme suit :

Après une introduction sur les plasmas de décharge électrique, dans le premier chapitre on donne quelques définitions sur les décharges luminescentes, notamment les décharges radiofréquences, qui sont largement utilisées dans la génération des plasmas réactifs utilisés en micro-électronique. On donne aussi, quelques définitions des différentes grandeurs caractéristiques qui décrivent l'état interne du plasma et à la fin de ce chapitre on donne une description générale de différents modèles largement utilisés pour savoir le comportement électrique, physique et chimique de décharges électriques.

Dans le deuxième chapitre, nous allons exposer le principe de la génération de nombres aléatoires. On développera ensuite un modèle particulaire auto cohérent. Ce modèle est basé sur l'estimation de libre parcours pour le traitement des collisions dans le cas d'un seul gaz et le cas d'un mélange. Ainsi, le modèle basé sur le temps de vol libre. On montera aussi comment résoudre l'équation du mouvement des particules chargées. Ainsi, on expliquera le couplage avec l'équation de Poisson et sa résolution numérique.

Le troisième chapitre est consacré à l'étude des caractéristiques d'une décharge radiofréquence à basse pression dans l'argon (variation spatio-temporelle du champ électrique, variation spatio-temporelle des densités : électroniques et ioniques, l'énergie moyenne de chaque espèce, etc.). En commençant par la validation des sections efficaces utilisées, et on terminant par une comparaison entre les résultats de calcul obtenus par le modèle développé et les résultats expérimentaux qui existent dans les littératures. Passant par, une étude sur

l'influence de différents paramètres opératoires sur les caractéristiques électriques de la décharge radiofréquence.

Le dernier Chapitre de cette thèse est dédié à l'étude d'une décharge radiofréquence dans un mélange argon-oxygène en présence et en absence du champ magnétique. Où on commence par le calcul des sections efficaces de collisions considérées pour ce mélange à basse pression. Après, on montre les résultats obtenus pour une décharge radiofréquence dans l'oxygène pur, et l'effet de la pression partielle de l'oxygène dans une décharge radiofréquence dans le mélange Argon/Oxygène. A la fin en montre l'effet du champ magnétique sur les caractéristiques électriques de la décharge pour un mélange 90%Ar/10%O_2.

CHAPITRE : I

DECHARGES ELECTRIQUES ET PHENOMENE DU PLASMA REACTIF

I.1 Introduction

Le plasma est un gaz complètement ou partiellement ionisé mais électriquement neutre. Les plasmas dans lesquels se produisent des réactions chimiques sont parfois appelés des plasmas réactifs où la plupart des plasmas rencontrés dans les applications technologiques ou industriels sont réactifs. Dans ce chapitre on va définir les différents particules constituons un plasma réactif. Après on va définir les différentes grandeurs caractéristiques qui décrivent l'état interne du plasma. Puis on donne quelques définitions sur les décharges luminescentes, notamment les décharges radiofréquences, qui sont largement utilisées dans la génération des plasmas réactifs utilisés en micro-électronique pour le dépôt des nano-films en micro-électronique. A la fin de ce chapitre on donne une description générale de différents modèles largement utilisés pour savoir le comportement électrique, physique et chimique de décharges électriques.

I.2 Description des particules présentes dans un plasma réactif

I.2.1 Neutres stables

Ils se définissent comme les atomes ou molécules qui ne se dissocient pas spontanément, ne réagissent ni avec eux-mêmes, ni avec d'autres neutres stables, ni avec les parois. Il convient de distinguer entre les neutres stables condensables (atomes de métal dans une métallisation par pulvérisation, molécules diverses sur des parois fortement refroidies) et les neutres stables gazeux ne sont détruits que par collisions avec une particule porteuse d'énergie. Généralement, les neutres stables gazeux dominent en nombre les autres espèces dans un plasma réactif à basse pression.

I.2.2 Electrons

Les électrons libres représentent le véritable moteur des décharges électriques. Du fais de leurs masses relatives très faible ; pour la même énergie ils se déplacent beaucoup plus vite que les autres espèces. Ils répondent aux perturbations électromagnétiques sur des échelles de temps très courtes que les ions. C'est aussi les électrons qui, du fait de leur grande mobilité, sont responsables de la conductivité électriques des plasmas.

I.2.3 Ions positifs et négatifs

A l'inverse des électrons qui sont tous identiques. La zoologique des espèces ioniques dans une décharge réactive peut être riche de nombreuses variétés. Dans une décharge très puissante les ions sont en général de composition chimique simple (A^+). Mais, peuvent être multichargés (A^+, A^{++}, etc…).

Par contre, dans les décharges réactives traditionnelles les ions sont en général une fois chargés mais se présentent comme édifices moléculaires complexes. Par exemple, dans le cas d'une décharge dans un mélange Argon-Hydrogène. Le contenu ionique de décharge est Ar^+, H_3^+ et on trouve aussi l'ion ArH^+ [Ne-2].

Dans beaucoup de décharge, en particulier dans les gaz électronégatifs (Halogènes, oxygène, oxydes d'azote, etc…) on trouve des ions négatifs. Ces se forment généralement par attachement dissociatif d'un électron libre sur une molécule électronégative.

I.2.4 Fragments moléculaires

Un plasma réactif peut être contenir un grand nombre de fragments moléculaires lesquels, au bout d'un temps assez court, réagiront soit avec une autre molécule, soit avec la paroi. Il peut s'agir soit d'atomes simples (H, N, O, etc.), soit édifices moléculaires plus complexes parmi lesquels les radicaux de la chimie traditionnelle (CH_3, CH_2, CH, etc…).

Le terme radical désigne un fragment moléculaire dont le nombre d'électrons périphérique est impair, par exemple NO, CH_3, OH, etc…

I.2.5 Etats excités

Dans le décompte des particules (ions, neutres stables, fragments moléculaires), il convient de distinguer celles qui sont excitées : ces particules sont dans état énergétique supérieur au niveau le plus bas dit niveau fondamental. Cet excès d'énergie peut promouvoir des réactions nouvelles qui ne seraient pas possibles au fondamental. L'énergie interne peut être stockée de différentes manières :

- ***Energie cinétique :***

Il est impossible de parler d'excitation pour une particule animée d'un mouvement rapide. Mais, l'énergie en question peut être utilisée à l'occasion d'une collision inélastique. Ce sont les ions qui, par accélération dans un champ électrique, peuvent dans une décharge acquérir une énergie cinétique importante.

- ***Energie de rotation :***

Les espèces formées de deux atomes ou plus peuvent acquérir une énergie de rotation. Cette énergie est quantifiée, le saut d'énergie entre niveau est faible, de l'ordre de 0.01 eV.

- ***Energie de vibration :***

Ce type d'excitation correspond à une déformation périodique de la structure moléculaire. On peut, d'une manière simpliste di stinguer entre la vibration d'élongation d'une liaison chimique et les vibrations de torsion angulaire de deux liaisons. Là encore la molécule ne peut passer d'un état d'énergie à un autre état que par un saut quantique. L'ordre de grandeur de ces sauts d'énergie est de 0.1 eV.

- ***Energie électronique :***

Un atome peut voir, à la suite d'une excitation, un de ses électrons placés sur une orbitale plus énergétique. L'atome est alors excité électroniquement et aussi les niveaux d'énergie électroniques sont quantifiés. L'énergie de ces niveaux est de plusieurs électronvolts.

Une espèce excitée électroniquement peut tomber (monter) d'un niveau à un autre en émettant (absorbant) un photon dont l'énergie correspond à la différence d'énergie entre les deux niveaux. L'état excité disparait par émission spontané en quelques centaines de nanosecondes. Par contre, l'état excité métastable peut avoir un très long de vie.

- ***Photons :***

Les photons sont le plus souvent émis par dé-excitation des états électroniques, ils sont donc d'énergies ou des spectres de raies bien définies. Ces spectres sont caractéristiques

des espèces émissives, ils sont donc porteurs d'une information sur la composition du plasma. La quantité de photons émise par le plasma peut représenter une part notable de l'énergie dissipée dans la décharge. Les photons peuvent aussi avoir une influence sur la chimie de la décharge par irradiation des parois et photolyse du gaz. Ceci est particulièrement vrai pour la composante UV.

I.3 Grandeurs caractéristiques du plasma

I.3.1 Densités des espèces

La densité d'une espèce donnée représente le nombre de particules contenues en moyenne par unité de volume autour d'un point donné de l'espace et à un instant donné. Les densités sont souvent exprimées par cm^{-3} ou m^{-3}. Pour un plasma réactif, les densités qu'il faut connaître sont la densité électronique n_e, la densité des ions positifs $n_i^{+,}$ la densité des ions négatifs n_i^-, la densité des neutres n_o et la densité des radicaux n_r ou de tel ou tel état excité n_o^*, n_r^* ou n_i^*.

I.3.2 Taux d'ionisation, de dissociation, d'excitation

Il souvent plus parlant de décrire l'état du plasma à l'aide de proportion comme τ_i le taux d'ionisation défini par : $\tau_i = n_i /(n_i + n_r + n_0)$. C'est le rapport de la densité des ions à la densité totale (densité des neutres + densité des radicaux + densité des ions).

Au moins dans les plasmas réactifs, le taux d'ionisation reste très inférieur à 1. Le taux de dissociation τ_d est défini comme le rapport de la densité des fragments (radicaux) à la somme de la densité des radicaux et la densité des neutres $\tau_d = n_r /(n_r + n_0)$.

Enfin, le rapport de d'excitation qu'est défini comme le rapport de la densité des particules excitées à la somme de la densité des particules excitées et la densité des neutres $\tau^* = n^* /(n^* + n_0)$.

I.3.3 Fonction de distribution

Pour une description fine d'un plasma au voisinage d'un point donné à un instant donné, la connaissance des densités est insuffisante, il faut aussi décrire l'état énergétique des

particules, en particulier leur distribution en vitesse. Pour cela on définit la fonction de distribution de l'espèce s par la fonction $f_s(r, v, t)$.

Cette fonction donne le nombre moyen de particules de type s et de masse m_s qui, se trouvent dans un volume élémentaire dr^3 autour d'un point r dont les extrémités du vecteur vitesse se trouvent dans un volume de l'espace des vitesses dv^3 autour du point v, et à l'instant t.

A l'équilibre thermodynamique, la fonction de distribution de vitesse est maxwellienne :

$$f_s\left(r,v,t\right)=n_s(r,t)\left(\frac{m_s}{2\,\pi\,k_B\,T}\right)^{3/2}\exp\left(-\frac{m_s\,v^2}{2\,k_B\,T}\right) \quad \text{(I-1)}$$

Où k_B : est la constante de Boltzmann, T : la température et $n_s(r,t)$: la densité des particules de type s autour du point r et à l'instant t.

La fonction de distribution en énergie qui correspond au nombre de particules dont leurs énergies sont comprises entre ε et ε + dε s'écrit :

$$f_s\left(r,\varepsilon,t\right)=n_s(r,t)\frac{2}{k_B\,T}\left(\frac{\varepsilon}{\pi\,k_B\,T}\right)^{1/2}\exp\left(-\frac{\varepsilon}{k_B\,T}\right) \quad \text{(I-2)}$$

A partir de cette fonction de distribution on peut facilement calculer :

- La densité

$$n_s=\iiint f_s dv^3=\int_0^{\infty}4.\pi.v^2.f_s dv \quad \text{(I-3)}$$

- La vitesse moyenne

$$\overline{v}=\frac{1}{n_s}\iiint v f_s dv^3=\frac{1}{n_s}\int_0^{\infty}4.\pi f_s v^3 dv=\left(\frac{8\;k_B T}{\pi\;m_s}\right)^{1/2} \quad \text{(I-4)}$$

• La vitesse la plus probable : Calculons la vitesse pour laquelle $4\pi v^2 f_s(r,v,t)$ est maximum. Celui-ci se trouve à la valeur de la vitesse pour laquelle la dérivée par rapport à la vitesse est nulle

$$v_{pp} = \frac{d}{dv}\left[4\,\pi\,v^2\,f_s\left(r,v,t\right)\right] = \left(\frac{2\,k_B T}{m_s}\right)^{1/2} \qquad \text{(I-5)}$$

- La vitesse quadratique moyenne (Root Mean Square)

$$V_{RMS} = \frac{1}{n_s}\sqrt{\iiint v^2 f_s dv^3} = \frac{1}{n_s}\sqrt{\int_0^\infty 4.\pi v^4 f_s dv} = \left(\frac{3 k_B T}{m}\right)^{1/2} \qquad \text{(I-6)}$$

- L'énergie moyenne de l'agitation cinétique par unité de volume

$$\begin{aligned}\varepsilon_c &= \frac{1}{n_s}\frac{1}{2} m_s \iiint f_s\left(v-\overline{v}\right)^2 dv^3 \\ &= \frac{1}{n_s}\frac{1}{2} m_s \int_0^\infty 4.\pi.v^2 f_s\left(v-\overline{v}\right)^2 dv = \frac{3}{2} k_B T\end{aligned} \qquad \text{(I-7)}$$

- L'énergie la plus probable :

Comme pour la vitesse, l'énergie la plus probable est calculée en prenant la dérivée mais ici comme on veut obtenir l'énergie, on utilise les expressions écrites en termes de l'énergie.

$$\varepsilon_{pp} = \frac{d}{d\varepsilon}\left[\left(\frac{4\varepsilon}{\pi\left(k_B T\right)^3}\right)^{1/2} \exp\left(-\frac{\varepsilon}{k_B T}\right)\right] = \frac{1}{2} k_B T \qquad \text{(I-8)}$$

- Le flux par unité de surface de particule traversant un élément de plan dans le même sens que sa normale *u*

$$\varphi = \iiint_{\vec{u}.\vec{v} \succ 0} f_s\, \vec{v}.\vec{u}\; dv^3 \qquad \text{(I-9)}$$

- Le Taux de réaction en ($cm^{-3}.s^{-1}$) entre deux groupes des particules (particules de type s et particules de type u).

$$R_{su} = \iiint\iiint v_r.\sigma(v_r).f_s.f_u.dv_u^3.dv_s^3$$
$$= n_s.n_u\sqrt{\frac{2}{\pi}}\left(\frac{\mu}{k_B T}\right)^{3/2}\int_0^{\infty} v_r^3.\sigma(v_r).\exp\left(-\frac{\mu v_r^2}{2k_B T}\right).dv_r \qquad \text{(I-10)}$$

Ou v_r et μ sont respectivement la vitesse relative et la masse réduite

- Le constant de réaction en ($cm^3.s^{-1}$) entre ces groupes est :

$$k_{su} = \langle\sigma(v).v\rangle = \frac{R_{su}}{n_s.n_u} \qquad \text{(I-11)}$$

- En fin, la fréquence de réaction en (s^{-1}) des particules de type s est :

$$\upsilon_{su} = n_s\langle\sigma(v).v\rangle = n_s.k_{su} \qquad \text{(I-12)}$$

I.3.4 Potentiel plasma

Le potentiel électrostatique moyen dans le plasma est bien défini, il est à peu près constant dans le volume du plasma. Le meilleur moyen de le définir est à partir de l'énergie nécessaire pour transporter une particule chargée depuis le plasma jusqu'au endroit où le potentiel est nul. D'une manière générale le potentiel plasma est supérieur par rapport aux parois qui l'entourent.

I.3.5 Fréquence plasma

Si un volume élémentaire du plasma est écarté à son neutralité électrique (par exemple déplacement des électrons d'un volume élémentaire à un autre), ce volume élémentaire revient à son neutralité en oscillant au voisinage de la fréquence plasma.

$$f_p = \frac{\omega_p}{2\pi} \qquad \text{(I-13)}$$

Avec $\omega_p^2 = \frac{e^2 n_e}{\varepsilon_0 m_e}$ où e : charge élémentaire, m_e : la masse de l'électron, n_e : densité d'électrons et ε_0 : la permittivité du vide.

I.3.6 Longueur de Debye

La longueur de Debye est la distance parcourue par un électron thermique pendant un cycle de pulsation plasma où :

$$\lambda_D = \frac{v_e}{\sqrt{2}\omega_p} \qquad \text{(I-14)}$$

Où v_e est la vitesse de l'électron. Il peut être aussi donné par la formule suivante :

$\lambda_D{}^2 = \frac{\varepsilon_0 k_B T_e}{e^2 n_e}$ où k_B est la constante de Boltzmann et T_e la température électronique.

La longueur de Debye donne l'échelle des distances typiques sur les lesquelles une perturbation électrostatique s'étend dans un plasma avant d'être écranté par la réponse des charges de plasma. En particulier, du fait de son interaction avec les autres charges, une particule chargées voit son potentiel colombien moyen à une distance r devenir

$$V(r) = \frac{e}{4\pi\varepsilon_0}\frac{1}{r}\exp\left(\frac{-r}{\lambda_D}\right) \qquad \text{(I-15)}$$

Le potentiel est écranté sur une distance de l'ordre de λ_D, et de même les épaisseurs des gaines sont de l'ordre de quelques fois la longueur de Debye.

I.3.7 Longueur de Landau

On appelle longueur de Landau la distance pour laquelle l'énergie potentielle d'interaction entre deux électrons est égale à leur énergie cinétique d'agitation thermique. Cette distance est donc telle que

$$\lambda_L = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 k_B T_e} \qquad \text{(I-16)}$$

I.3.8 Classification des plasmas

La théorie des plasmas s'applique à des milieux dont les densités varient de $10^6 cm^{-3}$ à $10^{25} cm^{-3}$. De même les températures peuvent varier de 10^{-2} à 10^4 eV, quand on va des

décharges froides aux plasmas de fusion. Les ordres de grandeurs de différents paramètres du plasma sont donnés dans la figure I-1. On retiendra surtout que dans les plasmas de décharges appliquées au traitement de surface (pulvérisation, gravure, déposition) la densité varie de 10^8 à 10^{12} cm^{-3} (typiquement 10^{10} cm^{-3}) et la température électronique peut varier de 0.1 à 10 eV (typiquement 1 eV). Ces plasmas sont classés comme cinétiques classiques, ils sont caractérisés par la double inégalité forte $\lambda_L \ll d_e \ll \lambda_D$ (d_e est la distance inter-particulaire). Où $\lambda_L \ll d_e$ indique que les corrélations sont négligeables et $d_e \ll \lambda_L$ montre que l'on trouve un grand nombre d'électrons dans la sphère de Debye.

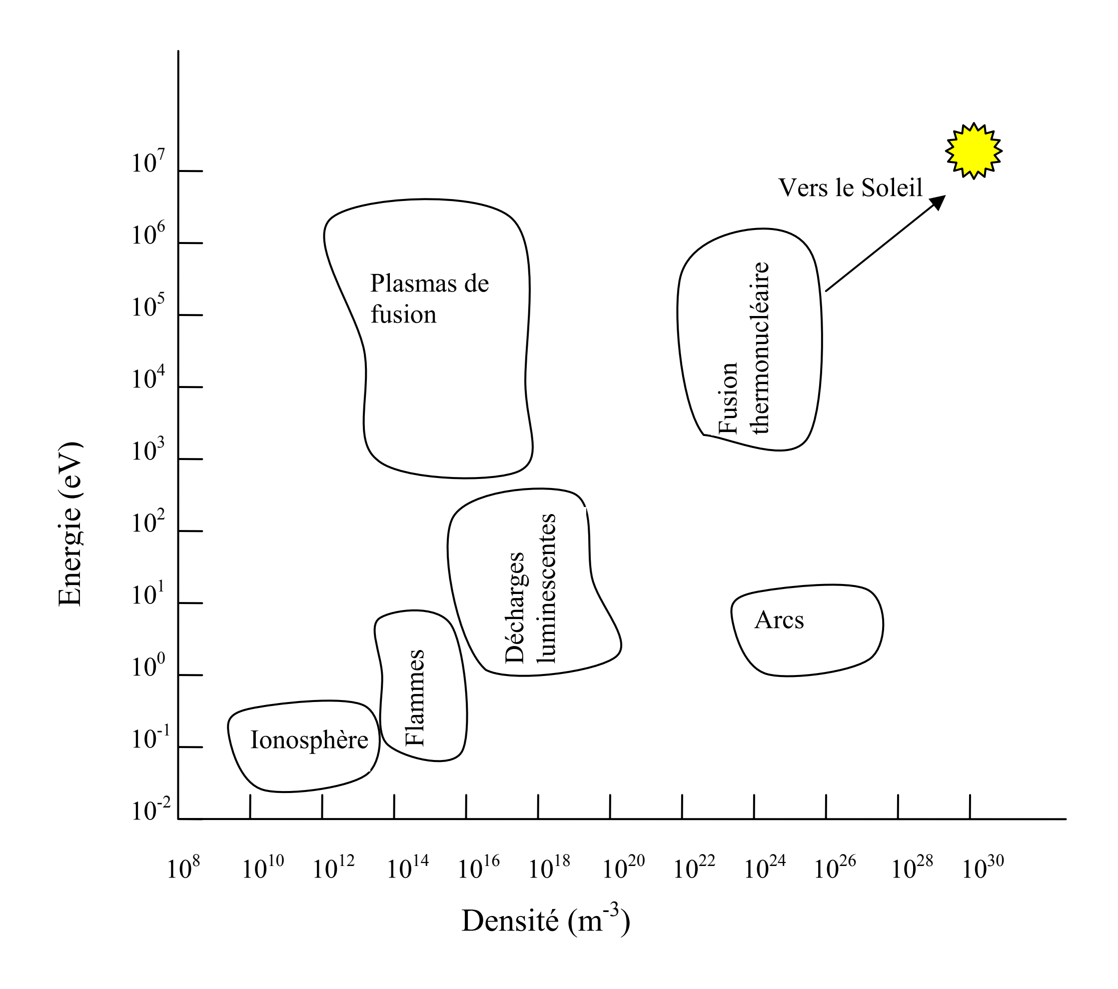


Fig. I-1 : Classification du plasma en température électronique et en densité (Shohet [Sh-1])

I.4 Description des réactions dans un plasma réactif

Dans ce paragraphe nous allons décrire et en les classant quelques réactions importantes qui intervient dans les plasmas réactifs.

I.4.1 Réactions primaires

Les réactions primaires sont les collisions inélastiques entre les électrons et les neutres stables. Parmi les nombreuses possibilités des réactions, on distingue :

- ***Ionisation***

Exemple : $e + Ar \text{ --- > } Ar^{+} + 2e$

- ***Ionisation dissociative***

Exemple : $e + O_2 \text{ --- > } O^{+} + O + 2e$

- ***Excitation***

Exemple : $e + H_2 \text{ --- > } H_2^{*} + e$

Ces réactions peuvent être éventuellement suivies de dissociation et/ou d'émission d'un photon.

Exemple : *Emission* $H_2^{*} \text{ --- > } H_2 + h\nu$

Dissociation $H_2^{*} \text{ --- > } H + H$

Emission dissociative $H_2^{*} \text{ --- > } H + H + h\nu$

Toutes ces réactions primaires ont un seuil en énergie, les électrons doivent avoir une énergie supérieure à ce seuil pour donner lieu à la réaction. Après la collision l'électron a perdu une énergie importante qui ce trouve dans le nouvel état de l'atome ou la molécule où la affectée. Cette perte correspondante en énergie doit être compensée par le mécanisme moteur de la décharge, généralement le champ électrique continu ou oscillant qui transfère de l'énergie aux électrons.

I.4.2 Réactions secondaires

Au contraire aux réactions primaires. Les réactions secondaires sont très diverses. Elles comprennent toutes les réactions entre une espèce instable issue plus ou moins directement d'une réaction primaire et le gaz neutre stable. Citant quelques exemples :

- ***Réaction Ion – molécule***

Exemple : $H_2^+ + H_2$ --- > $H_3^+ + H$

$CH_4^+ + CH_4$ --- > $CH_5^+ + CH_3$

$CH_3^+ + CH_4$ --- > $C_2H_5^+ + H_2$

$H^- + CH_3F$ --- > $CH_4 + F^-$

- ***Réaction Radical – molécule***

Exemple : $H + SiH_4$ --- > $SiH_3 + H_2$

- ***Attachement dissociatif***

Exemple : $e + O_2$ --- > $O^- + O$

- ***Détachement collisionnel associatif***

Exemple : $C_2^- + H_2$ --- > $C_2H_2 + e$

L'attachement dissociatif est considéré parfois réaction primaire, on a le classé ici car l'attachement concerne souvent les électrons froids (électrons secondaires).

I.4.3 Plasma très dissocies

Jusqu'ici on a exclu de cette description les réactions mutuelles entre les particules instables (particules chargées, radicaux, métastables, etc.). En effet, dans beaucoup de plasmas, le degré d'ionisation est faible (inférieur à 10^{-4}), la probabilité qu'une particule instable rencontre une autre espèce instable est alors très faibles. Toutefois, dans les plasmas très intenses ces réactions peuvent intervenir. En citant ici quelques exemples :

- ***Recombinaison dissociative***

Exemple : $e + O_2^+$ --- > $O + O$

- ***Détachement par impact électronique***

Exemple : $e + O^-$ --- > $O + 2e$

- ***Réactions entre les radicaux***

Exemple : $SiH_3 + SiH_3$ --- > $SiH_2 + SiH_4$

- ***Collision super-élastique***

Exemple : e + Ar^* --- > Ar + e

- ***Excitation d'un radical***

Exemple : e + H --- > H^* + e

I.4.4 Réactions de parois

Les parois en regard d'un plasma sont soumises à un flux très intense de particules et d'espèces chimiques diverses. Elles sont les sièges d'un grand nombre de réactions qui peuvent résulter soit d'une modification chimique de la surface (passivation, oxydation, nitruration), soit d'une érosion de la paroi (gravure), soit enfin en formation de film mince (déposition). Dans les plasmas à faible pression (de l'ordre de mTorr) c'est aux parois qu'ont lieu l'essentiel des réactions de recombinaisons.

Ion positif + électron --------> neutre

Atome + atome --------> molécule

Ces réactions conduisant à une modification chimique soit des composants du gaz, soit des parois sont innombrables et complexes.

I.5 Les caractéristiques courant – tension d'une décharge électrique

Les décharges à basse pression font partie du domaine des plasmas froids réactifs, ces plasmas sont aussi hors équilibre, car la température des électrons est supérieure à celle des particules lourdes. Ils contiennent généralement des particules neutres, des électrons, des ions positifs et négatifs. L'application d'une tension continue entre deux électrodes d'un tube à gaz reste la méthode la plus classique et simple pour réaliser une décharge. Nous la prendrons comme exemple pour passer en revue différents types de décharges stationnaires, en adoptant comme critère de classification les régimes de fonctionnement successifs obtenus en faisant varier la tension appliquée (voir la figure I-2).

La figure I-3 représente la caractéristique courant – tension de la décharge, cette courbe fait apparaître plusieurs domaines correspondant aux différents régimes de fonctionnement,

que nous nous le décrirons, à l'exclusion du régime d'arc qui correspond aux courants les plus forts (région VIII). Ce dernier régime, caractérisé par l'apparition d'effets thermiques importants dans le gaz et sur les électrodes, constitue à lui seul un vaste thème d'étude et d'applications.

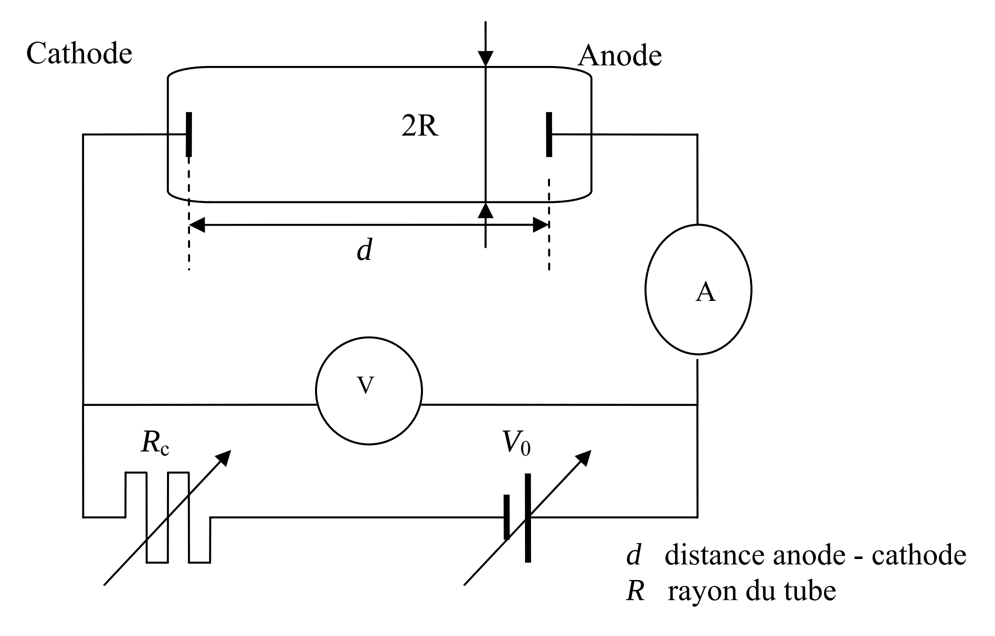


Fig. I-2 : Schéma électrique de la production d'une décharge

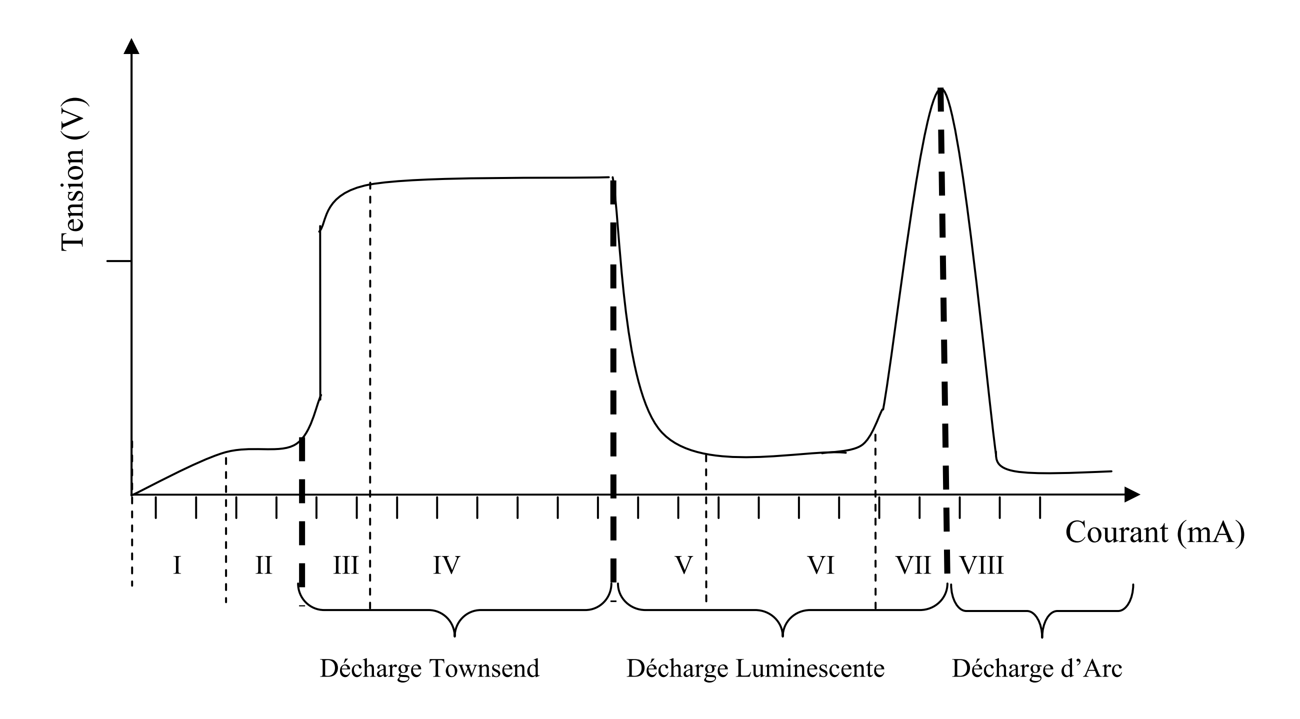


Fig. I-3 : Schéma de la caractéristique Courant-Tension de la décharge électrique (Meek [Me-1], Loeb [Lo-1], Druyvesteyn [Dr-1])

Région I : Décharge non autonome sans multiplication électronique et non saturée

Région II : Décharge non autonome sans multiplication électronique saturée

Région III : Claquage de type Townsend

Région IV : Décharge de Townsend

Région V : Décharge luminescente subnormale

Région VI: Décharge luminescente normale

Région VII : Décharge luminescente anormale

Région VIII : Décharge d'arc

I.5.1 Claquage et décharge Townsend:

Dans les régions (I) et (II) de la figure I-3, les courants et les tensions sont faibles (moins de 10^{-11} A, quelques 10 V) et la décharge n'existe qu'en présence d'un agent d'ionisation d'origine extérieure. Elle ne peut s'entretenir d'elle-même si cet agent disparaît. Pour cette raison, elle est dite non autonome, elle se présente par ailleurs sous un aspect sombre. Le taux d'excitation des atomes reste très faible. Les mécanismes susceptibles de produire les charges sont soit l'ionisation de la masse du gaz par un rayonnement (rayons cosmiques, radioactivité), soit l'émission secondaire de la cathode par effet thermoïonique ou photoélectrique. Le courant généré dans le circuit, en fonction du nombre d'espèces chargées ayant rejoint les électrodes, va croître, dans un premier temps, avec la tension appliquée (I), à partir d'une certaine tension, presque toutes les espèces chargées (ions et électrons) rejoignent les électrodes. Le courant sature et cesse de dépendre de la tension (II). Cette saturation est déterminée par le taux de charges créées par les sources externes.

Avec l'augmentation de la tension et avant avoir atteindre la saturation, le courant se remet à croître. Un tel régime, qui correspond à la région (III) de la figure I-3. Le gaz s'ionise par impact électronique, amplifiant le courant dû aux sources externes. C'est l'avalanche électronique résultant de ces processus primaires. Le courant est multiplié par un facteur $\exp(\alpha.d)$ qui correspond au nombre de paires d'ions produites par une avalanche électronique traversant l'espace inter-électrodes. Où d est la distance séparant les électrodes, α est le premier coefficient de Townsend. Ce coefficient d'ionisation définit le nombre d'électrons produits sur le chemin d'un électron parcourant 1 cm dans le sens du

champ électrique. Dans cette région le courant n'est toujours pas auto-entretenu. Pour cela il faut augmenter encore la tension pour que les processus d'émission secondaire (photo-ionisation, bombardement ionique et métastables (*Meek* [Me-2]) entrent en jeu (création d'électrons par les particules issues des processus primaires d'ionisation ou d'excitation par impact électronique). Les processus d'émission secondaire sont d'autant plus efficaces, pour la multiplication des avalanches, s'ils se produisent à la cathode : les électrons sont ainsi accélérés sur tout l'espace inter-électrodes jusqu'à l'anode, fournissant une ionisation plus importante qu'un électron provenant du milieu de l'espace inter-électrodes. Dans la région (IV) le claquage a lieu et la tension aux bornes des électrodes atteint le seuil de saturation et l'amplification des électrons entre les électrodes tende vers l'infini, autrement dit que la relation suivante est vérifiée.

$$\gamma \left[e^{\alpha d} - 1 \right] = 1 \qquad \text{(I-17)}$$

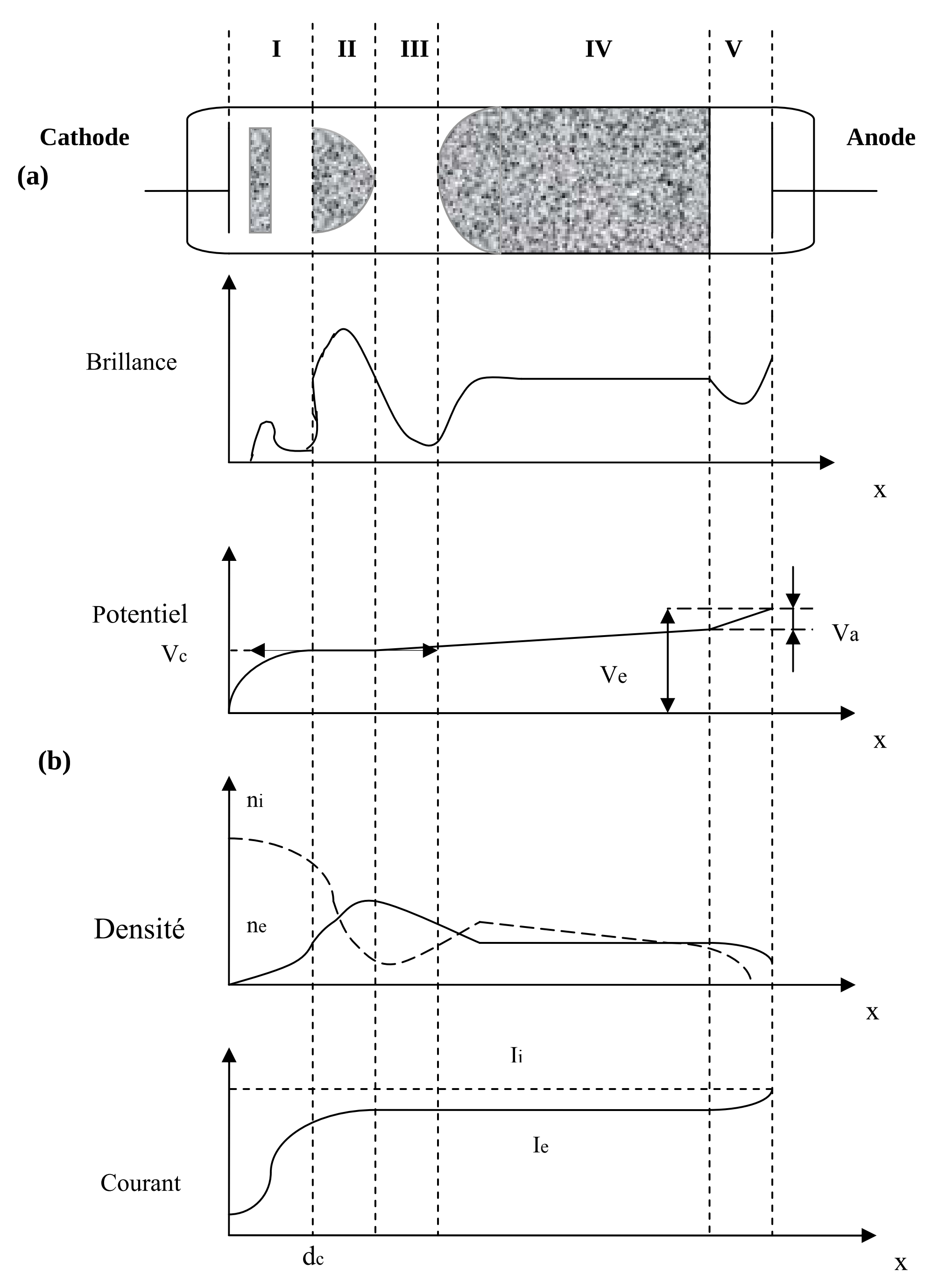
Où γ est le second coefficient de Townsend (Townsend [To-1])

I.5.2 Décharge Luminescente :

On distingue trois régimes dans les décharges luminescentes : subnormal région (V), normal région (VI) et anormal région (VII). Pour le régime normal, la tension est constante et le courant est faible, la surface de la décharge ne recouvre pas toute la surface des électrodes. Quand le courant augmente, la décharge s'étale radialement. A partir d'un certain moment, la surface de la décharge correspond à la surface des électrodes. Si on augmente encore le courant, la tension augmente pour maintenir la condition d'auto-entretien ; on se trouve alors dans le régime anormal. Entre la cathode et l'anode, on distingue cinq zones, identifiables par leur luminosité (Figure I-4).

I.6 Propriétés principales d'une décharge Luminescente

La répartition du champ électrique diffère dans chacune de ces zones. Dans l'espace cathodique les électrons quittant la cathode sont attirés et accélérées par le champ électrique intense, l'énergie gagnée est suffisante pour produire des métastables.



I : Espace cathodique II : Lueur négative III : Espace de faraday

IV : Colonne positive V : Zone anodique

(a) aspect de la décharge

(b) répartition longitudinale des caractéristiques

Fig. I-4 : Propriétés principales d'une décharge Luminescente (Delcroix [De-1])

La première couche lumineuse apparaît par suite des processus de désexcitation. Puis, ces électrons qui ont perdu leur énergie sont à nouveau accélérés : ils engendrent d'autres

couches lumineuses de faible intensité et beaucoup d'électrons gagnent une énergie capable de provoquer l'ionisation du gaz.

La lueur négative est la zone la plus lumineuse, car les électrons arrivant de la chute cathodique sont très rapides et par suite ils sont responsables aux nombreux processus d'excitation et également d'ionisation, les particules excitées émettent de la lumière en se désexcitant. Les électrons qui ont perdu leur énergie atteignent l'espace de faraday où il n'y a aucune émission lumineuse et la charge d'espace majoritaire est négative car cette zone est caractérisée par peu de réactions réactives, l'absence de ces réactions conduit à la croissance de champ électrique et donc les électrons à nouveau gagnent l'énergie. Dans la colonne positive les densités d'espèces chargées positivement et chargées négativement sont égales ; comme la charge globale d'espace tend vers zéro, les électrons sont ralentis et le champ devient quasi nul. Pour que la décharge soit auto-entretenue, il faut créer des électrons par ionisation pour compenser les pertes aux parois. C'est dans la colonne positive que le champ va augmenter suffisamment pour accélérer de nouveau les électrons qui avaient été ralentis dans la lueur négative. La zone anodique comprend l'espace sombre anodique et la gaine anodique, elle est caractérisée par une charge d'espace négative et une chute de tension anodique et par suite un champ électrique important que dans la colonne positive, cela peut provoquer des réactions réactives qui expliquent l'existence d'une certaine luminosité.

Les décharges luminescentes à basse pression ont beaucoup d'applications dans l'industrie, tels que le traitement de surface, source de lumière où des rayons et le dépôt des couches minces en micro et nanoélectronique. Les décharges luminescentes continues, généralement sont utilisées dans le dépôt des couches métalliques, et les décharges radiofréquences pour le dépôt des couches isolantes.

I.7 Les Décharges Radiofréquences :

Les décharges Radiofréquences sont souvent utilisées dans les réacteurs PECVD (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) pour la création du plasma réactif (A. Salabas [Sa-1]) à des fréquences très faibles ($\leq$ 10 Khz), le mécanisme de création d'électrons chauds est similaire à celle de fonctionnement dans les plasmas crées par des décharges continues, où les électrons secondaires sont accélérés à la cathode gagnent

suffisamment d’énergie pour ioniser les molécules ou les atomes de gaz. Cependant, il s'agit d'un processus inefficace, quand la fréquence augmente dans la gamme de Mhz, le transfert d’énergie aux électrons devient très efficace par l’expansion des gaines, et cela assure le maintien de la décharge. Dans cette section, nous signalons aux plusieurs caractéristiques du base des décharges Radiofréquences couplées capacitivement. Typiquement, la décharge a lieu dans un volume défini par deux électrodes planaires d’environ de 300 cm^2 de surface et séparés par une distance de quelques-uns à dix centimètres (figure I-5). On peut aussi d’ajouter une grille latérales pour confiner le plasma entre les électrodes. Généralement, une électrode est mise à la terre tandis que l’autre est relié à la source RF par l’intermédiaire d’une capacité de blocage C_B (*Meijer* [Me-3], *Goedheer* [Go-1], *Radouane* [Ra-1]).

Les décharges RF peuvent être produites dans différents gaz et pour différents pressions selon l’application demandée, (p > 100 mTorr pour PECVD, p = 10-100 mTorr pour la pulvérisation cathodique et la gravure). Les tensions appliquées en radiofréquences est typiquement de quelques centaines de Volts. Au cas où les électrodes sont asymétries un potentiel d’auto polarisation (V_{dc}) sera induit.

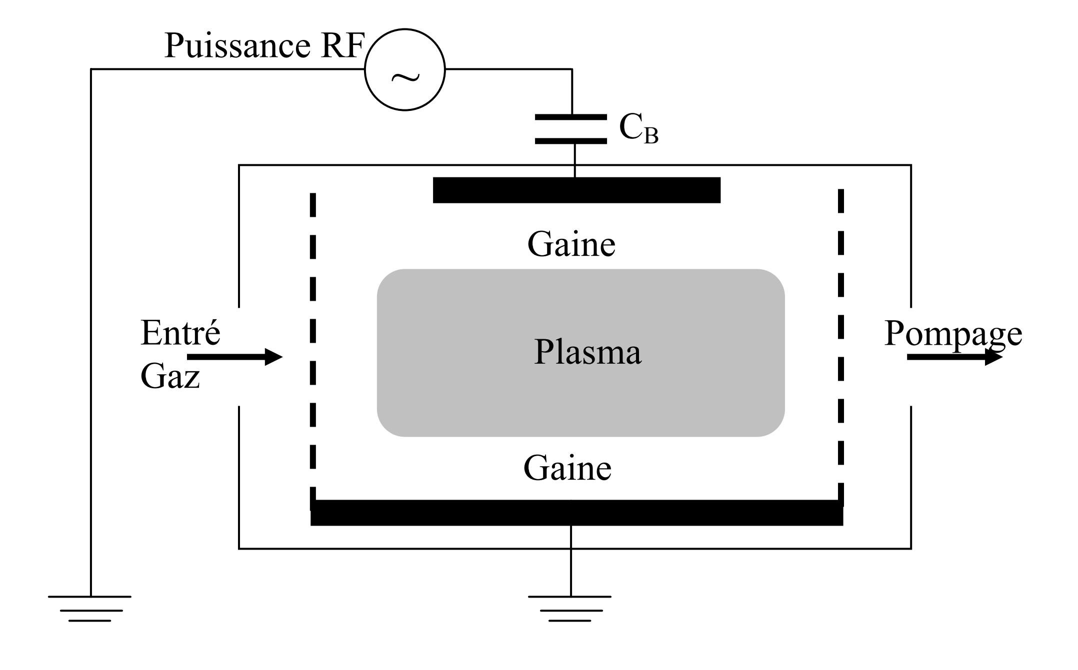


Fig. I-5 : Représentation d’une décharge Radiofréquence avec couplage capacitif

Dans ces procédés, la cible, ou le substrat est localisée à la surface de l’une des électrodes. Pour cette raison, non seulement le comportement du volume de la décharge,

mais aussi les caractéristiques des limites du plasma, à savoir les gaines adjacentes aux électrodes, sont d'un grand intérêt. Par exemple, la distribution du potentiel d'espace entre les deux électrodes est importante pour déterminer le comportement des espèces ioniques et les électrons, en particulier, dans la région de la gaine ionique au voisinage de l'électrode où les ions positifs sont accélérés et bombardent ainsi le substrat. L'énergie de bombardement dépend de la chute de potentiel dans la gaine et la distribution en énergie détermine le degré d'anisotropie de gravure, l'amplitude des dégâts à la surface, etc…

I.7.1 Les gaines et le plasma

Une image intuitive raisonnables pour le déplacement des particules chargées dans les décharges RF est celle de l'oscillation des électrons sur les ions immobiles, alternent avec des contractions et des expansions de la gaine de l'électrode. Ces gaines correspondent à des régions où la charge d'espace est nettement positive. Elles sont situées entre la plus grande partie de décharge (le plasma) et les parois de l'enceinte, qui sont formées en raison de la différence entre la mobilité des électrons et des ions. Les oscillations du nuage électronique déterminent l'épaisseur de la gaine instantanément à proximité de chaque électrode. Lorsque, par exemple, le potentiel de l'électrode RF devient plus en plus négatif, les électrons s'éloignent plus en plus vers le plasma et on dit que la gaine est en expansion et le nuage d'électrons se rapproche de l'électrode mis à la terre entraîne une réduction de l'épaisseur de la gaine et on dit qu'elle est en contractions. En général, les électrons piégeant dans le plasma et ils ne peuvent pas d'affranchir la barrière du potentiel de la gaine. Cependant, pour un couplage capacitif parfait le courant électrique est nul, cela signifie que pendant une petite fraction du cycle radiofréquence, un certain nombre (plus énergique) d'électrons peuvent traverser la gaine radiofréquence, créant un courant d'électrons à l'électrode RF qui compense le nombre d'ions attaché sur l'électrode durant la période entière.

I.7.2 Le potentiel d'auto polarisation

En général, les décharges radiofréquences couplées capacitivement présentes des configurations asymétriques, où la surface de l'électrode mis à la terre est grande que celle de l'électrode relié à la source radiofréquence, et un potentiel d'auto polarisation sera induit pour compenser le courant ionique durant la période RF (*Chapman* [Ch-1]).

I.8 Modélisations des plasmas de décharge électrique

La modélisation des plasmas de décharge électrique est aujourd'hui considérée comme un outil pratique pour la conception et l'optimisation des installations expérimentales utilisées dans les procédés assisté par plasma.

La simulation de plasma de décharge permet à la conception des réacteurs. Elle nous donne des informations sur les dimensions optimales, l'emplacement des fenêtres de la pompe, le type de source d'alimentation et aussi l'emplacement des capteurs de pression. Par la simulation on obtient des réponses rapide concernant les effets des différents paramètres : la pression, la puissance, le débit de gaz sur la performance générale du système. Pour un réacteur donné, des modèles multidimensionnelles plus précis de la décharge sont utilisés pour prédire le taux de dépôt, épaisseurs des gaines, la distribution spatiale des radicaux, etc. Ces aspects sont couverts par des modèles sophistiques, y compris la description du transport des particules chargées, la dynamique de la gaine, etc.

A ce moment, il n'ya pas des logiciels commerciaux traitant tous les processus pertinents physiques et chimiques se produisant dans un plasma, en fournissant un certain nombre d'informations en fonction des conditions de fonctionnement du réacteur, dans un laps de temps raisonnable. La complexité des systèmes et des restrictions du temps d'ordinateur, justifient le développement d’un modèle orienté vers une application, impliquant souvent un grand nombre d'approximations.

Les modèles (0D, 1D) ne peuvent pas être négligés. Ces approches permettent d’estimer rapidement les caractéristiques fondamentales du plasma (densité d’électron, température, etc.). La comparaison des résultats de calcul à celles de l’expérimentales permet de tester et de régler les données de base a adopté, en vue de nouvelles utilisations dans des modèles multidimensionnelles. Les réactions compliquées peuvent être également traitées d’une manière plus apte à être gérée en termes de temps de calcul.

Toutefois, dans des décharges RF utilisés pour la gravure / dépôt, il ya un nombre important de paramètres tels que le potentiel d'auto-polarisation, la distribution de la puissance au sein de la décharge, la gravure et l'uniformité de dépôt, qui ne peuvent être convenablement traités par simulations multidimensionnelles (2D, 3D).

Le développement d'un modèle de décharge est basé sur une idée fondamentale: le couplage entre le champ électrique appliqué et le plasma et ce modèle est connu par le nom auto-cohérent.

Selon l'approche utilisée pour simuler les plasmas de décharges, on peut distinguer quatre catégories de modèles :

- Modèle Cinétique
- Modèle Particulaire
- Modèle Fluide
- Modèle hybride

I.8.1 Modèle Cinétique

C'est l'approche la plus précise mais la moins praticable. Il est basé sur la résolution de l'équation de base (Boltzmann), cette équation est donnée comme suit :

$$\frac{\partial f_s}{\partial t}+\frac{q_s}{m_s}\left(E+v\times B\right).\nabla_v.f_s+v.\nabla_r.f_s=\sum_u C(f_s,f_u) \qquad \text{(I-18)}$$

Le premier terme décrit la dépendance temporelle, le deuxième terme explique les changements de la vitesse dus à la présence d'un champ de force extérieure, le troisième rend compte de l'influence des inhomogénéités spatiales causés par les vitesses des particules et le gradient de la densité et le second membre représente l'intégrale des collisions entre l'espèce s et l'espèce u.

Pour résoudre cette équation, il est toujours nécessaire de simplifier l'équation générale et de chercher des solutions approximatives. Ces simplifications peuvent porter sur les points suivants:

-Le nombre de dimensions :

Dans le cas général, la fonction de distribution f_s est décrite dans l'espace de phase (r, v) comportant 6 dimensions, ce qui est en général impossible à résoudre à l'aide de méthodes analytiques et encore très exigeant pour les ordinateurs d'aujourd'hui. Il est nécessaire de réduire le nombre de dimensions en imposant des symétries dans le problème.

- Termes de collisions :

Les intégrales de collision “exactes” sont souvent très complexes. Il faut les simplifier.

-Développement en polynômes de Legendre :

Une autre simplification souvent employée est de faire un développement limité de la fonction de distribution dans l’espace des vitesses en polynômes de Legendre p_n

$$f\left(v,\theta\right)=\sum_{n=0}^{\infty} f_n\left(v,\theta\right).p_n.\cos\theta \qquad \text{(I-19)}$$

Où θ est l’angle par rapport à une direction privilégiée du problème (par exemple la direction du champ électrique), et de résoudre le système d’équations couplées pour les différents termes du développement. Le plus souvent on pose n = 1.

I.8.2 Modèle particulaire

Le modèle particulaire est basé sur le traitement d’un échantillon des particules représentant toutes les espèces des particules dans le plasma (par exemple, des électrons et des ions) et suivre leurs mouvements dans l'espace des phases. Cela se fait en intégrant les équations du mouvement pour chaque particule de masse m, charge q et de vitesse v, soumis à un champ électrique E et un champ magnétique B

$$m\frac{dv}{dt}=q\left(E+v\times B\right) \qquad \text{(I-20)}$$

Les densités des particules chargées sont calculées aux centres des cellules. Le champ électrique est calculé aux nœuds par la résolution de l’équation de Poisson. Puis, on calcule les nouvelles forces exercées sur chaque particule en interpolant le champ électrique à ses positions. Le libre parcours ou le temps de vol libre de chaque particule est calculé à l’aide de tirage d’un nombre aléatoire et par suite le type de collision est déterminé en comparant le rapport des fréquences ou les sections efficaces à un autre nombre aléatoire. La séquence de calcule se trouve dans la référence (*Vahedi* [Va-1], *Radouane* [Ra-1], *Benyoucef* [Be-1], *Benyoucef* [Be-2]).

I.8.3 Modèle fluide

Le modèle de décharge où la description du transport des particules est basée sur les valeurs moyennes est appelé modèle fluide.

En principe, la cinétique des électrons et des ions dans un plasma faiblement ionisé peut être caractérisée en utilisant l'équation de Boltzmann correspondante qui représente l'équation de continuité dans l'espace des phases (r, v), elle détermine la fonction de distribution de chaque espèce de particules tenant compte les force extérieures et les processus collisionnels.

La résolution numérique de L'équation de Boltzmann dans le cas multidimensionnels et tenant compte la dépendance temporelle est très difficile. En plus, pour un modèle auto cohérent qui nécessite le couplage avec l'équation de Poisson, le problème sera très compliqué numériquement. En pratique, le plasma de décharge est caractérisé par ces propriétés moyennes : densité, vitesse moyenne, énergie moyenne, etc. Dans ce cas l'équation de Boltzmann est remplacée par les équations des caractéristiques moyennes (les moments de l'équation de Boltzmann (*Delcroix* [De-1]). Ces moments corresponds à une série infinie d'équations hydrodynamiques et le développement d'un modèle fluide nécessite deux hypothèses principales.

La première hypothèse concernant la série infinie des équations hydrodynamiques générées par l'équation de Boltzmann ; la fermeture du système sera au deuxième moment ou au troisième moment (l'équation de continuité de mass, de quantité du mouvement et l'équation de l'équilibre en énergie local) et au deuxième moment pour les ions (l'équation de continuité de mass, de quantité du mouvement).

La seconde hypothèse concerne la fermeture du système d'équations moment qui exige des hypothèses supplémentaires. Le problème est double ; Premièrement, il est habituel d'adopter à supposer que les vitesses thermiques des particules sont très élevées devant les vitesses de dérive. Deuxièmement, le système d'équations contient des moments intégraux de la fonction de distribution des particules, qui peut être interprété physiquement comme des paramètres de transport des particules et des taux de réactions. Par conséquent, pour calculer ces intégrales, il est nécessaire de formuler certaines hypothèses sur la fonction de distribution des particules, ce qu'est particulièrement délicate pour les électrons. En

radiofréquence, les électrons ne sont pas en équilibre thermodynamique local en raison de l'échange énergétique entre les électrons énergétiques et les particules lourdes, ce qui signifie que le Fonction de Distribution d'Energie FDE dévie à la distribution maxwellienne. Maintenant, il est claire que le modèle fluide nécessite les équations de continuités de mass et de la quantité de mouvement pour les électrons et les ions, l'équation de continuité de l'énergie moyenne pour les électrons et le couplage avec l'équation de Poisson pour avoir un modèle auto cohérent que soit en 1D, 2D ou 3D (*Nienhuis* [Ni-1]) .

Cependant, concernant les conditions de fermeture du problème, on distingue deux approximations pour le calcul de FDE.

- Approximation du champ local (ACL)
- Approximation de l'énergie locale (AEL)

Dans l'approximation du champ local (ACL), on suppose que les coefficients de transport des électrons et les taux des réactions sont à la fois fonctions du champ réduit $E(r, t) /p$; où $E(r, t)$ est le champ électrique au point r et à l'instant t et p est la pression du gaz. Autrement dis que la FDE au point (r, t) est considérée la même que pour un champ réduit uniforme. Cette hypothèse de l'équilibre au champ local signifie que l'énergie gagnée par les électrons en présence du champ électrique au point (r, t) est localement compensée par la perde d'énergie due aux collisions (*Richards* [Ri-1]).

Par contre, dans l'Approximation de l'énergie locale (AEL). Les coefficients de transport des électrons et les taux des réactions sont à la fois fonction de l'énergie moyenne des électrons calculée par l'équation de la continuité de l'énergie dans le modèle fluide. Cependant, le modèle fluide ne permet pas de calculer les fonctions de distribution de différentes espèces chargées. Ce manque des informations peut être compensé par le code hybride (particulaire-fluide). Les résultats du modèle fluide sont confrontées avec les data expérimentaux et les résultats du modèle particulaire correspondant.

I.8.4 Modèle hybride

Le terme modèle hybride est utilisé à désigné une autre simulation en considérant deux groupes des électrons. Ces deux groupes de population électronique sont relativement

indépendants. Le premier inclut la majorité des électrons à faible énergie. Le deuxième groupe est composé par les électrons énergétiques accélérés en présence du champ électrique. Afin de optimisé le temps de calcul les électrons du premier groupe sont traités à l'aide du modèle fluide. Par contre, les électrons rapides sont traités en adoptant une méthode de type Monte Carlo (MC) (*Vahedi* [Va-2]).

Dans ce modèle, le terme source d'ionisation et le terme source d'excitation par impact électronique n'apparaitront pas dans les équations hydrodynamiques. Car les électrons responsables à ces deux phénomènes sont les électrons les plus énergétiques. Alors, il ne reste comme terme source dans les équations de transport, que les termes des réactions de faible énergie (recombinaison, attachement, etc).

Ce modèle peut donner aussi, une description des régions anisotropes (gaines) avec un temps de calcul raisonnable, comme il permet de décrire les interactions particules surfaces (*Sommerer* [So-1]), ce qui ajusté entre la description physique complète, le temps de calcul et la précision.

I.9 Conclusion

Ce chapitre est une approche très simple de la phénoménologie de la décharge électrique et le plasma réactif. La description des décharges luminescentes et les décharges radiofréquences et leurs caractéristiques et propriétés fond un objectif de ce premier chapitre. Afin de donné un aperçu général sur les différents modèles (cinétique, particulaire, fluide et hybride). Espérant que les lecteurs puissent situer et comprendre le prochain chapitre.

Le chapitre suivant est consacré au développement d'un modèle particulaire auto cohérent appliqué aux décharges radiofréquences unidimensionnelles (cas d'une décharge symétrique) et multidimensionnelles (cas d'une décharge asymétrique).

CHAPITRE : II

MODELE PARTICULAIRE ET TRAITEMENT DE COLLISIONS

II.1 Introduction

Le modèle particulaire est basé sur des méthodes de type Monte Carlo. Cette méthode est une approche statistique permettant la résolution d'équations comportementales déterministes comme probabilistes. Son utilisation ne se limite pas à la physique, et encore moins à la modélisation des décharges. Du calcul du nombre π, à la détermination plus lucrative des probabilités de gagner aux jeux de hasard, elle a fait l'objet d'un très grand nombre d'utilisations.

L'utilisation de cette méthode en physique des plasmas a permis le développement de modèles particulaires (*Sakai* [Sa-2], *Birstall* [Bi-1]), simulant le comportement du plasma suivant une approche microscopique, par opposition aux modèles dits « fluides » qui traitent le plasma comme un fluide homogène en le caractérisant par des grandeurs moyennes. La simulation Monte Carlo d'un ensemble d'ions ou d'électrons présents dans un gaz dans lequel ils font des collisions et subissant une force due au champ électrique où électromagnétique, permet de suivre l'évolution temporelle de ce groupe de particules dans l'espace des phases. Cette méthode est basée sur la génération de nombres aléatoires permettant de recréer un enchaînement d'évènements réels, comme par exemple le mouvement d'une particule accélérée dans un champ électrique et faisant des collisions.

Dans ce chapitre nous allons exposer les paramètres des décharges radiofréquences. On développera ensuite un modèle particulaire auto cohérent. Ce modèle est basé sur l'estimation de libre parcours pour le traitement des collisions à l'aide de tirage des nombres aléatoires. Cette technique est similaire à la technique de temps de volo libre tenant compte les collisions nulles. On montera aussi comment résoudre les équations du mouvement des particules chargées et la détermination de leurs trajectoires en tirant aussi des nombres aléatoires. Ainsi, on expliquera le couplage avec l'équation de Poisson et sa résolution numérique dans le cas unidimensionnel et multidimensionnel.

II.2 Sources et paramètres des décharges radiofréquences

Les décharges RF sont beaucoup utilisées pour les applications diverses en traitement de matériaux. Les principaux avantages de ces décharges sont :

- Plus efficace que les décharges continues.
- Peut traiter des matériaux isolants.
- sources relativement bon marché.
- capable de produire des plasmas de grands volumes de géométrie plane et cylindrique.

Originalement, les décharges étaient crées par un couplage capacitif via des électrodes, mais récemment les décharges avec couplage inductif plan sont devenues de plus en plus populaires pour le traitement de matériaux.

II.2.2 Décharge radiofréquence capacitive

Les paramètres électrique importantes qui caractérisent une décharge radiofréquence couplée capacitivement sont : la tension d'auto-polarisation V_{dc} (qui mesure l'asymétrie de la décharge) et la puissance électrique couplée P_{eff} (qui mesure la puissance électrique transférée au plasma).

La tension radiofréquence appliquée à la cathode du réacteur permet d’osciller les électrons dans leur mouvement d'oscillation entre les électrodes, sur un fond d’ions quasi-statique. Ce mouvement peut conduire à l’accumulation de la charge à la fin de chaque cycle radiofréquence. Dans la plupart des cas, le réacteur a une configuration asymétrique où l’aire de la cathode est très petite devant l’aire de l’anode. Alors, un courant d'électrons axial se développe lorsque les électrons sont repoussés de la cathode au cours de l’expansion de la gaine cathodique. Inversement, un courant d'électrons axial plus important apparaît lorsque les électrons sont collectés à l’anode au cours de la contraction de la gaine anodique.

En conséquence, et afin d’assuré le mode de fonctionnement de réacteur purement capacitif (la valeur moyenne du courant durant un cycle radiofréquence doit être nulle), il est nécessaire que le circuit extérieur contient une capacité de blocage C_B. Cette capacité a une impédance négligeable pour la fréquence d’excitation, afin de compenser l'accumulation de la charge due à la configuration asymétrique.

La Figure II.1 représente le schéma et le schéma électrique équivalent d'un réacteur radiofréquence fréquence couplé capacitivement.

Les capacités C_c et C_a sont associés respectivement, à la cathode et à l'anode, tandis que Y_p est l'admittance du plasma.

Le courant sinusoïdal qui circule dans le circule $I_{rf}(t) = I_{max}\cos(\omega t)$; (I_{max} : le courant complexe maximum). La chute de tension entre les extrémités du plasma V_p, crée par ce courant est donnée par l'expression suivante :

$$V_p(t) = \frac{I_{rf}(t)}{Y_p} \qquad \text{(II-1)}$$

Cette équation montre que cette chute de tension est linéaire avec le courant (pas de génération d'harmonique). Ce n'est pas le cas pour la différence de potentiel V_s aux bornes de la capacité équivalente C_s, qui représente la combinaison série des deux capacités gaines C_c et C_a. Ces dernières dépendent de l'épaisseur de la gaine correspondante. La capacité équivalente est non-linéaire elle est responsable de la production des harmoniques.

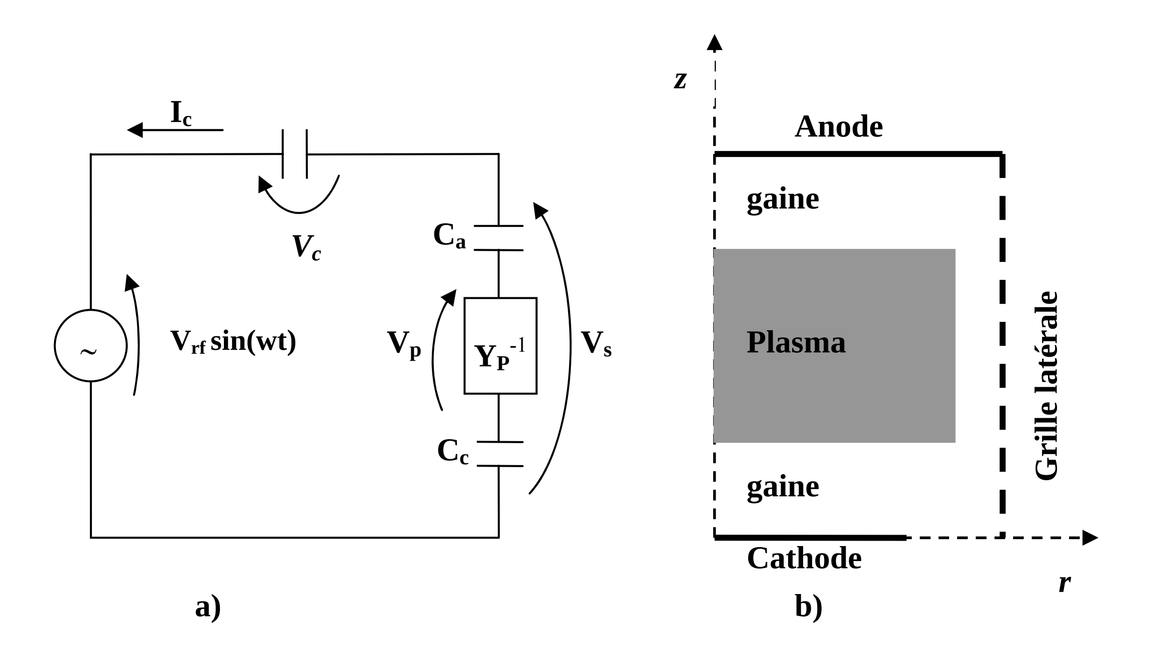


Fig. II-1 : b) Schéma simplifié d'un réacteur RF, et a) schéma électrique équivalent

La charge accumulée durant un cycle radiofréquence donne un potentiel d'auto-polarisation. Dans le calcul, la valeur initiale de ce potentiel est considérée nulle et elle varie durant un cycle radiofréquence suivant la relation :

$$V_{dc} = V_{dc0} + \frac{1}{C_B} \int_{t}^{t+T_{rf}} i(t')dt' \quad \text{(II-2)}$$

Où V_{dc0} est le potentiel d'auto-polarisation du cycle précédent, i(t') le courant total qui circule dans la capacité C_B et T_{rf} la période du cycle radiofréquence.

Le courant total à la cathode, peut être obtenu en intégrant la composante axiale de la densité totale de courant sur la surface de l'électrode (la densité du courant de conduction i_c et la densité du courant de déplacement i_D).

La tension d'auto-polarisation se stabilise quand l'intégral du courant total sur un cycle radiofréquence s'annule (la valeur moyenne du courant total est nulle). Quand la valeur moyenne du courant de déplacement est nulle, c.-à-d. que la valeur moyenne du courant de conduction qui s'annule.

Enfin, la relation qui nous permet d'évaluer la puissance électrique effective couplée au plasma est la suivante :

$$P_{eff} = \frac{1}{T_{rf}} \int_{t}^{t+T_{rf}} \left[V_{dc} + V_{rf}\sin(\omega t)\right] i(t')dt' \quad \text{(II-3)}$$

II.2.2 Décharge radiofréquence inductive

Ces sources sont généralement utilisées dans un régime de fonctionnement à haute densité. Ces sources sont communément excitées à 13.56 MHz. Il n'y a rien de magique à cette fréquence, la raison est "administrative". C'est une fréquence allouée par les autorités responsable de la gestion des communications. Bien que l'alimentation RF soit à une fréquence permise, ceci n'aide pas la technologie des réacteurs parce que les phénomènes plasmas étant non-linéaire, beaucoup d'harmoniques sont générées dans des bandes électromagnétiques non- permises.

Il y a deux types de base de géométrie: la géométrie cylindrique pour laquelle une bobine entoure le plasma cylindrique ou la géométrie planaire ou la bobine est un enroulement plat.

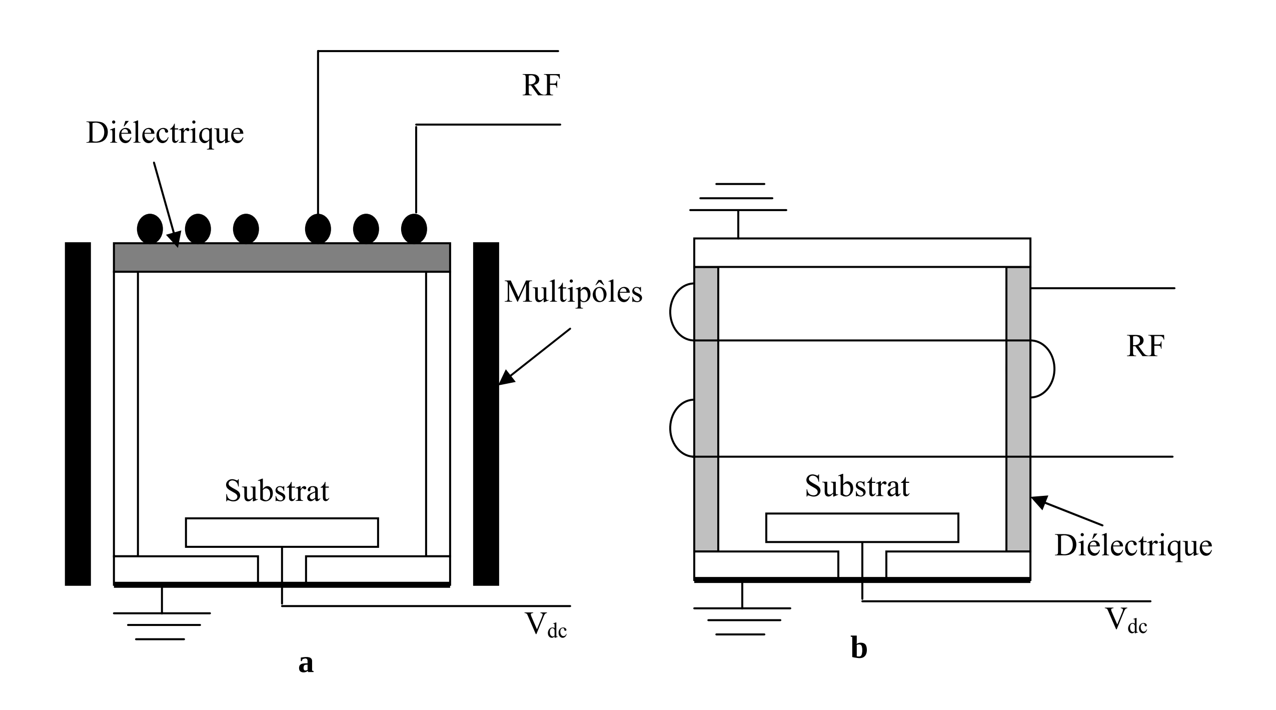


Fig. II-2 : a) Source inductive planaire, b) source inductive cylindrique

Dans ce type de décharge, le champ électrique interne qui génère le courant est produit par un champ magnétique oscillant; la relation entre les deux est déterminée par les équations de Maxwell. Pour cette raison ces décharges sont appelées « Inductively Coupled Discharges (ICD) ou Inductively Coupled Plasmas (ICP).

II.2.3 Circuit d'adaptation de l'impédance :

Dans le cas d'un générateur RF, en général adapté sur 50 Ω, le circuit d'adaptation doit faire en sorte que l'impédance de l'ensemble (circuit d'adaptation + décharge) ait une impédance effective de 50 Ω tout en créant des conditions de surtension entre les électrodes qui permettent d'amorcer et d'entretenir la décharge.

Pour une décharge radiofréquence à 13,56 MHz à couplage capacitif, on utilise en général une boîte d'adaptation en configuration L ou T avec une capacité variable en parallèle ainsi qu'une inductance et une autre capacité variable en série (figure II.3). Tandis que la configuration en Π avec deux capacités variables en parallèle encadrant une inductance est utilisée pour les décharges à couplage inductif. On emploie parfois un transformateur RF pour s'isoler de la masse.

En pratique, le circuit complet du système extérieur au générateur doit inclure non seulement les impédances de la boîte d'accord (adaptation) et de la décharge Z_D et celle des câbles coaxiaux. Mais aussi les impédances parasites du réacteur tel qu'une capacité en parallèle avec la masse, une inductance en série sur le retour de masse et une résistance en série correspondant aux pertes Joule dans les conducteurs qui ne conduisent que par effet de peau à haute fréquence [Po-2].

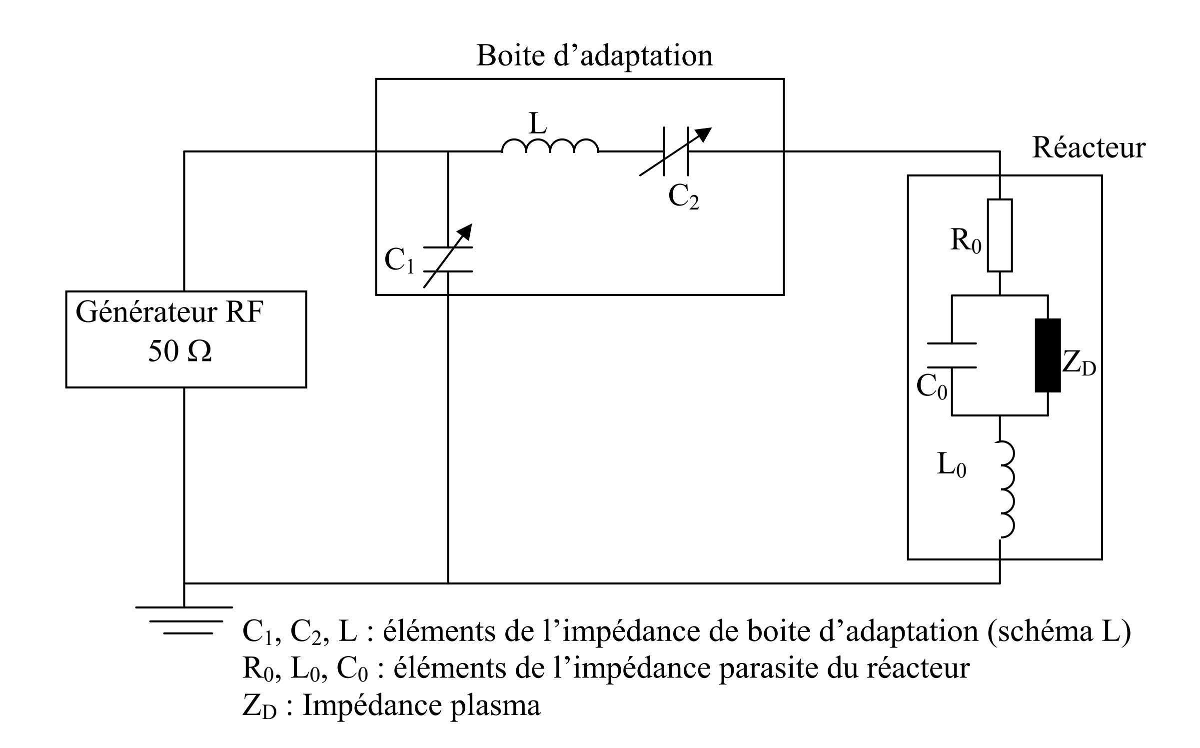


Fig. II-3 : Schéma électrique équivalent d'une décharge RF

Pour la pulsation fondamentale ω en négligeant les harmoniques générés dans le plasma. L'admittance totale est :

$$Y = jC_1\omega + \left[R_0 + j\left(L+L_0\right)\omega - \frac{1}{C_2\omega} \right] + \frac{1}{\left(jC_0\omega + 1/Z_D \right)} \qquad \text{(II-4)}$$

Les valeurs des capacités C_1 et C_2 sont fixées par la condition d'adaptation sur l'impédance, c'est-à-dire les deux équations :

$$\begin{aligned} &\mathrm{Re}\left[Y^{-1}\right] = 50\Omega \\ &\mathrm{Im}\left[Y^{-1}\right] = 0 \end{aligned} \qquad \text{(II-5)}$$

II.3 Mouvements des particules chargées dans un champ électrique

En présence d'un champ électrique E, les particules chargées (de charge e et de masse m) sont soumises à l'accélération (a) de la force de Laplace (m a = e E) qui obéit aux lois de la mécanique classique. En coordonnées cartésiennes (Oxyz), les composantes de cette force s'écrivent de la manière suivante :

$$m \begin{pmatrix} \frac{d v_x}{d t} \\ \frac{d v_y}{d t} \\ \frac{d v_z}{d t} \end{pmatrix} = e \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \tag{II-6}$$

Où v_x, v_y, v_z et E_x, E_y, E_z sont respectivement les composantes de vecteur vitesse et les composantes de vecteur champ électrique suivant les axes x, y, z .

La résolution de ce système d'équations de la dynamique permet de connaitre les composantes de vecteur position (x, y, z) et les composantes de vecteur vitesse (v_x, v_y, v_z) de la particule après un pas en temps Δt où :

$$\begin{pmatrix} v_x (\Delta t) \\ v_y (\Delta t) \\ v_z (\Delta t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} v_{x0} \\ v_{y0} \\ v_{z0} \end{pmatrix} + \frac{e \Delta t}{m} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \tag{II-7}$$

$$\begin{pmatrix} x (\Delta t) \\ y (\Delta t) \\ z (\Delta t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} x_0 \\ y_0 \\ z_0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} v_{x0} \\ v_{y0} \\ v_{z0} \end{pmatrix} \Delta t + \frac{e \Delta t^2}{2 m} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \tag{II-8}$$

avec v_{x0}, v_{y0}, v_{z0} et x_0, y_0, z_0 sont respectivement les composantes initiales de vecteur vitesse et les composantes initiales de vecteur position.

Dans la simulation Monte Carlo le champ électrique est calculé aux nœuds des cellules (segments, surfaces ou volumes élémentaires de discrétisation). Pour connaitre le champ

électrique exercé sur une pseudo-particule dans une telle cellule, il faut faire la pondération du champ électrique à la position de cette pseudo-particule.

II.3.1 Pondération du champ électrique aux positions des pseudo-particules

Chaque espèce de particules chargées réelles dans la décharge est représenté par un nombre limité de particules nommées super particules où pseudo-particules. Cela pour réduire le temps de calcul. Généralement, le programme de calcul se démarre par la simulation d'un ensemble de pseudo-particules distribuées uniformément dans le volume de la décharge, avec des vitesses maxwelliennes. En calculant l'évolution temporelle des densités tenant compte les nouvelles particules crées, et en résolvant l'équation de Poison pour calculer la nouvelle distribution du champ électrique après chaque pas en temps.

Pratiquement du coté numérique. Au lieu de calculer les valeurs de champ électrique dans toutes les positions de pseudo-particules pour savoir la force exercée sur chacune. On divise le volume de décharge en cellules de dimensions (Δx, Δy, Δz) et on calcule le champ électrique aux nœuds de ces cellules. Après, en pondérant le champ électrique à la position de chaque pseudo-particule pour calculer la force exercée sur elle.

La figure II-4 montre le parallélépipède utilisé pour calculer les coefficients de pondérations dans le cas d'une géométrie multidimensionnel.

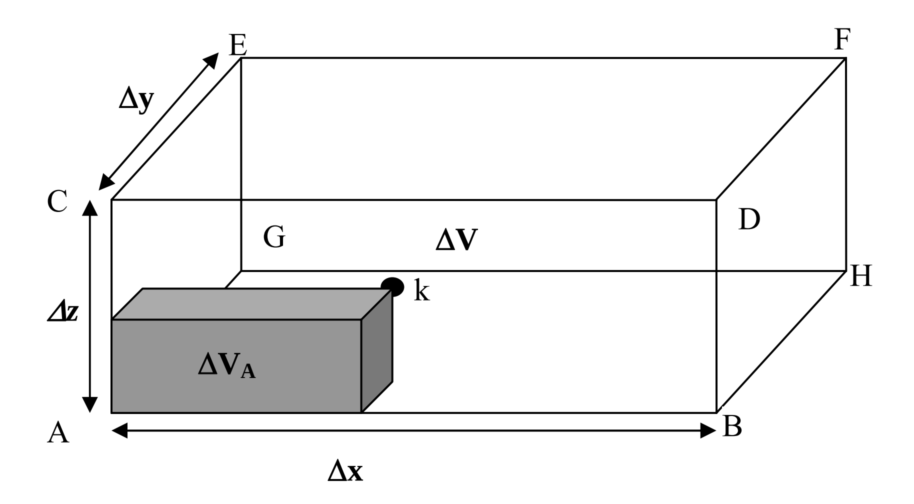


Fig. II-4 : Parallélépipède de pondération au point k d'un champ électrique au point F

Le coefficient de pondération du point F au point k (C_F) est le rapport volumique $\Delta V_A/\Delta V$. l'effet du champ électrique calculé au point F sur la charge située au point k est donné par l'expression suivante :

$$E_{Fk} = \frac{|x_A - x_k||y_A - y_k||z_A - z_k|}{\Delta x \, \Delta y \, \Delta z} E_F \qquad \text{(II-9)}$$

De même manière on calcule l'effet du champ électrique des points A, B, C, D, E, G, H sur la charge située au point k.

Dans le cas d'une symétrie de révolution (cas d'une géométrie cylindrique figure II-5).

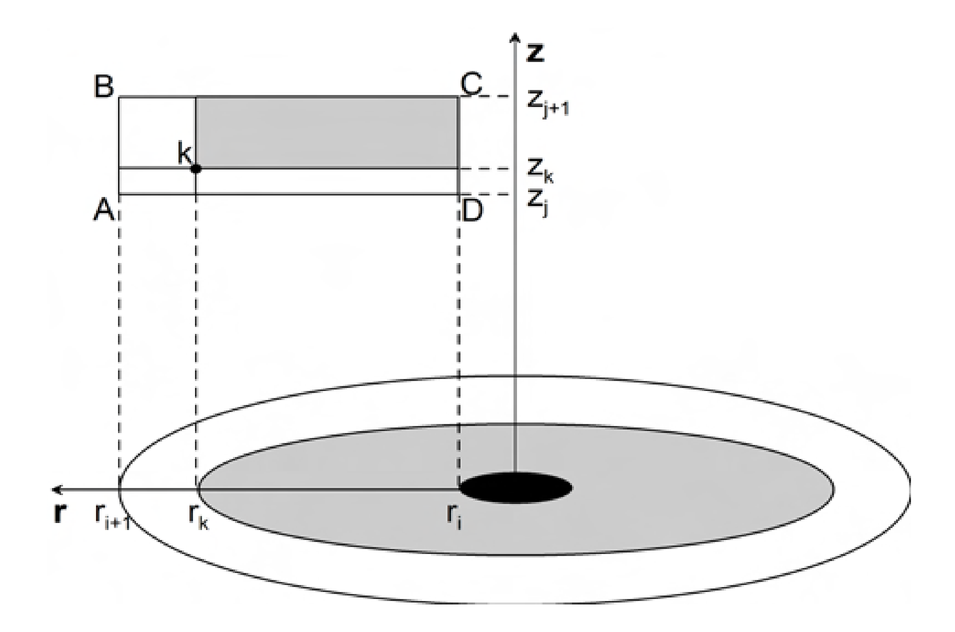
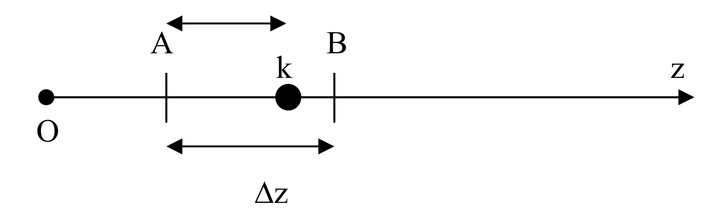


Fig. II-5 : Pondération du champ électrique pour une géométrie cylindrique

L'effet du champ électrique calculé au point A sur la charge située au point k est donné comme suit :

$$E_{Ak} = \frac{|r_c^2 - r_k^2||z_c - z_k|}{\Delta r \, \Delta z} E_A \qquad \text{(II-10)}$$

Pour un modèle unidimensionnel, le calcul de ces coefficients est très simple. Ils représentent le rapport entre la distance du point k au nœud et le pas spatial.



$$E_{Ak} = \frac{|z_B - z_k|}{\Delta z} E_A$$
$$E_{Bk} = \frac{|z_A - z_k|}{\Delta z} E_B \qquad \text{(II-11)}$$

Maintenant, l'effet total du champ électrique sur charge située au point k est la somme vectoriel des effets crées par les points adjacentes. Par exemple dans le premier cas, les différentes composantes du champ électrique au point k (E_{xk}, E_{yk}, E_{zk}) sont données par la relation suivante :

$$E_{xk} = \sum_{i \in A,B,...H} C_i \, E_{xi}$$
$$E_{yk} = \sum_{i \in A,B,...H} C_i \, E_{yi} \qquad \text{(II-12)}$$
$$E_{zk} = \sum_{i \in A,B,...H} C_i \, E_{zi}$$

Où C_i (i =A,B,…,H) sont les coefficients de pondération des point (A,B,…,H), et E_{xi} (i = A,B,…,H), E_{yi} (i =A,B,…,H), E_{zi} (i =A,B,…,H) sont respectivement les composantes du champ électrique calculé aux points (A,B,…,H).

II.3.2 Résolution de l'équation de Poisson

Le traitement auto-cohérent du transport des particules chargées dans les décharges électriques radiofréquences est assuré par le couplage avec l'équation de Poisson. Le champ électrique est fortement lié à la fois ; par la tension externe appliquée et du déséquilibre de la neutralité dû à la différence de mobilités entre les différents espèces du milieu dans le volume de décharge. Ce champ électrique s'écrit :

$$\vec{E}(r) = -\vec{grad}\ V(r) \qquad \text{(II-13)}$$

Où V(r) est le potentiel calculé correspondant au sein de la décharge en résolvant l'équation de Poisson. Supposant une simple ionisation, ce potentiel doit vérifier l'équation suivante :

$$\Delta V(r) = -\frac{e}{\varepsilon_0}\left(\sum_p n_p - \sum_n n_n - n_e\right) \qquad \text{(II-14)}$$

e, ε_0 sont respectivement la charge élémentaire et la permittivité du vide.

n_p, n_n, n_e sont respectivement la densité d'ions négatifs de type n, la densité d'ions positifs de type p et la densité d'électrons.

II.3.2.1 Modèle unidimensionnel (décharge symétrique)

Dans ce modèle (1D3V). Le champ électrique est calculé directement sans passer à la résolution de l'équation de Poisson, cela pour minimiser le nombre d'opérations arithmétiques de calcul, ce champ au point x est donné par la relation:

$$E(x)=\int_0^x \frac{\rho(x)}{\varepsilon_0}dx \qquad \text{(II-15)}$$

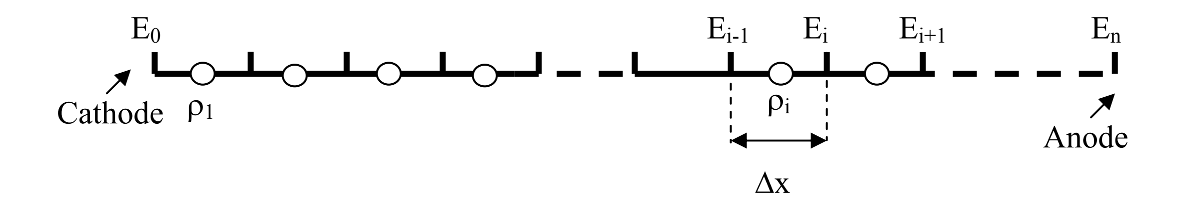
E(x), $\rho(x)$, ε_0 : sont respectivement, le champ électrique, la densité de charge au point x et la permittivité du vide. L'intégrale est calculée en fonction de la condition à la limite E(x=0), cette condition doit vérifier l'équation suivante :

$$-\int_0^d E(x)dx = V_a - V_c \qquad \text{(II-16)}$$

V_a : la tension anodique (considérée nulle), V_c : la tension cathodique en appliquant une tension radiofréquence et d : la distance inter-électrode.

Dans ce qui suit nous allons exposer l'algorithme de calcul du champ électrique dans le cas unidimensionnel, en détaillant les différentes étapes de calcul.

II.3.2.1.1 Algorithme de calcul du champ électrique



L'intervalle inter-électrode est divisé en n cellule identique. Le champ électrique est calculé dans les nœuds. Tandis que, la densité de charge aux centres des cellules. L'algorithme de calcul de champ électrique est comme suit :

Etape 1 : On considère $E_0 = 0$

Etape 2 : On calcul le champ électrique à chaque nœud (i) , (i =1,..,n)

$$E_i = E_{i-1} + \frac{\rho_i}{\varepsilon_o} \Delta x \qquad \text{(II-17)}$$

***Etape* 3** : L'intégrale de ce champ sur l'axe de décharge doit satisfaire les conditions aux limites. En utilisant la méthode trapézoïdale et on calcule le champ à la cathode ce champ est donné par l'expression suivante :

$$E_0 = \left(\frac{V_{rf}(t)}{\Delta x} - \sum_{i=1}^{n} E_i + \frac{E_n}{2} \right) \frac{2}{2n+1} \qquad \text{(II-18)}$$

Etape 4 : On recalcule le champ électrique dans chaque nœud, où ce champ sera décalé par E_0 ($E_i = E_i + E_0$ voir la figure II-6).

Comme nous l'avons dit, le calcul du potentiel n'est pas nécessaire. Mais, si on veut savoir sa distribution ou son évolution, on intègre le champ électrique suivant l'axe de décharge en utilisant la méthode de Simpson, la relation suivante nous permet d'exprimer le potentiel à chaque nœud.

$$V_i = V_{i-1} - \frac{\Delta x}{6}\left(E_{i-1} + 4E_i + E_{i+1}\right) \quad \text{avec} \quad V_0 = V_{rf} \qquad \text{(II-19)}$$

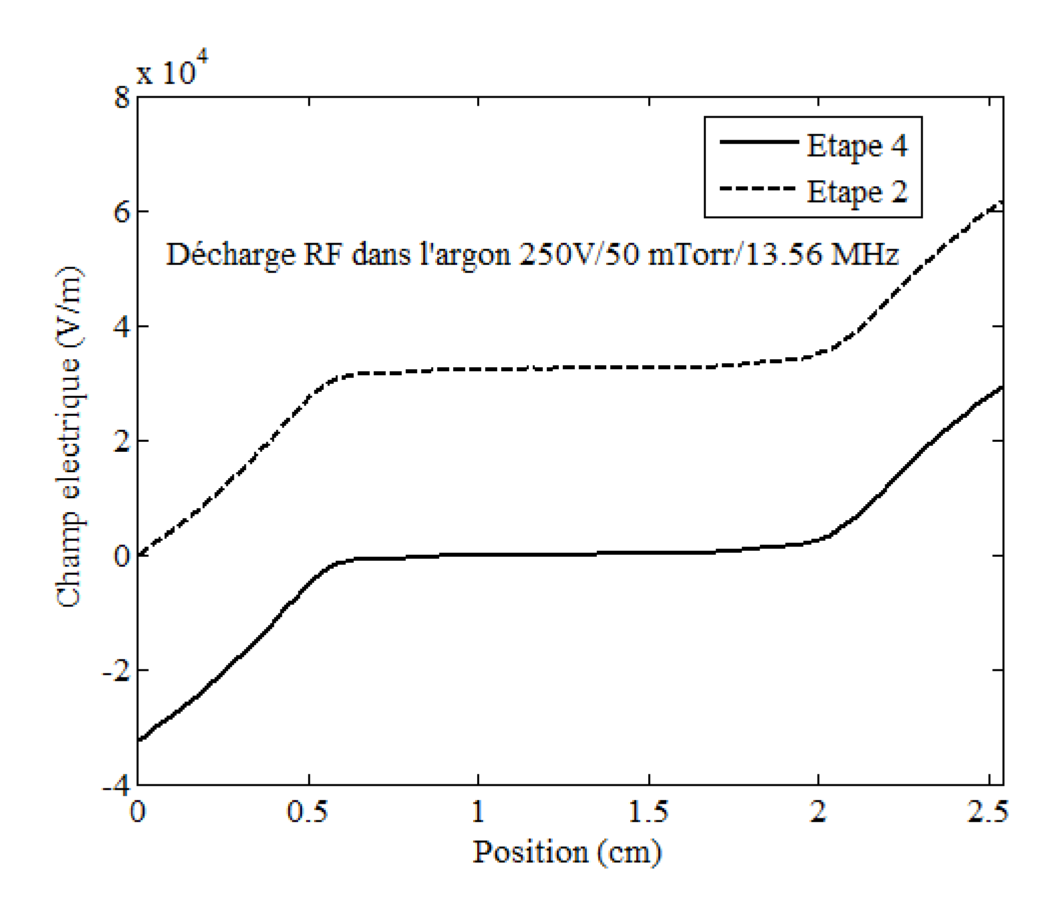


Fig. II-6 : Représentation du champ électrique calculé à l'étape 2 *et l'étape* 4

II.3.2.2 Modèle multidimensionnel (décharge asymétrique)

Pour une décharge asymétrique le modèle unidimensionnel n'est plus valable, il est nécessaire de passer au modèle multidimensionnel (deux dimensions) ou (trois dimensions) selon la géométrie du réacteur plasma. Dans ce travail de recherche, la géométrie du réacteur est considéré cylindrique, le schéma de ce réacteur est montré sur la figure II-7. Où une électrode est reliée directement à la masse pour avoir une température uniforme à sa surface. L'autre électrode est reliée à un générateur RF à travers une capacité de blocage. Ce couplage présente l'avantage d'avoir naturellement une tension continue (tension d'auto-polarisation). Cependant, cette tension dépend très fortement de la géométrie des électrodes.

La géométrie cylindrique nous permet de résoudre l'équation de Poisson en deux dimensions (r,z) en tenant la densité moyenne des particule chargées pour les points qui ont la même distance (r) à l'axe de symétrie de révolution. Pour garder le rapport : particules réelles/ pseudo-particules constant (volume élémentaire constant), la

discrétisation est considéré uniforme suivant l'axe de décharge (z). Par contre, le pas de discrétisation est considéré variable suivant l'axe radial (*r*).

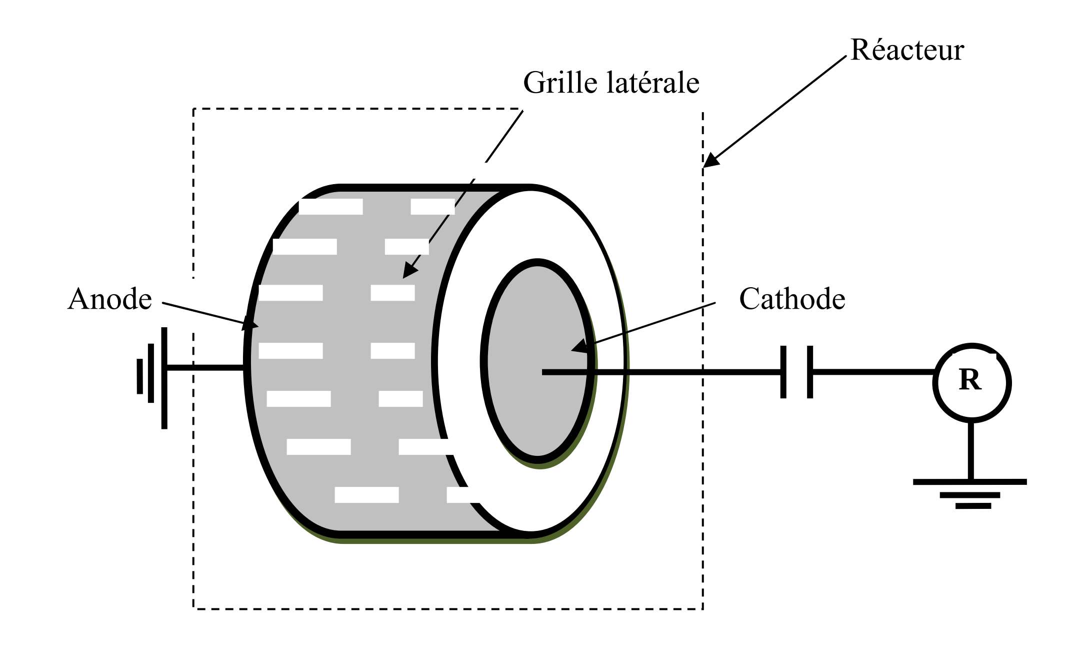


Fig. II-7 : Schéma du réacteur à simulé

La discrétisation utilisée dans cette thèse est montré dans la figure suivante :

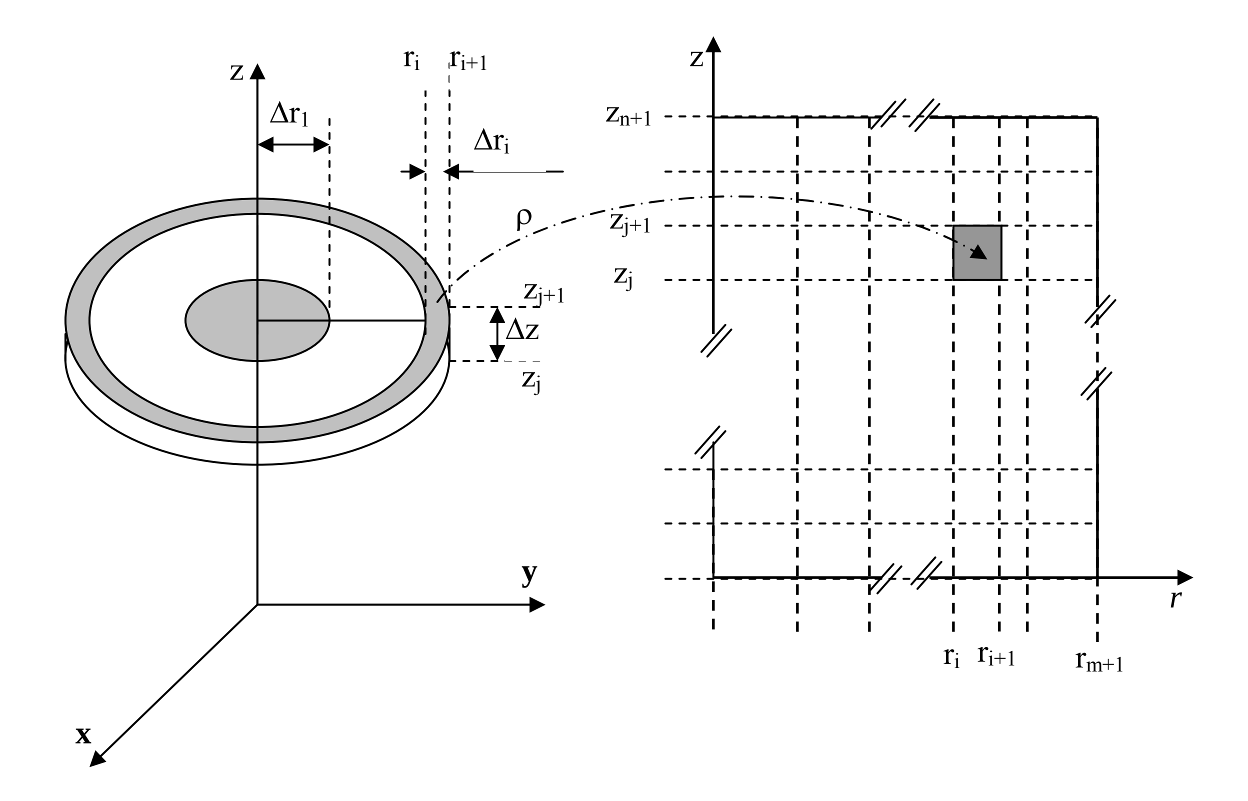


Fig. II-8 : Schéma de discrétisation du domaine de simulation (n×m cellules)

$$\Delta z = \frac{d}{n};\ \Delta r_1 = \sqrt{\frac{R^2}{m}};\ \Delta r_i = \sqrt{(i+1)\Delta r_1^2} - \sqrt{i\,\Delta r_1^2};\ r_i = \sqrt{(i+1)\Delta r_1^2}$$

Où d et R : sont respectivement la distance inter-électrode et le rayon du réacteur.

Pour calculer le champ électrique aux nœuds. Tout d'abord on calcule le potentiel à ces nœuds en résolvant l'équation de Poisson par une méthode itérative (méthode de Gauss Seidel dite de relaxation).

$$\Delta V = -\frac{\rho}{\varepsilon_0} = -\frac{e}{\varepsilon_0}\left(\sum_p n_p - \sum_n n_n - n_e\right) \quad \text{(II-20)}$$

Le premier terme de cette équation (le Laplacien en coordonnées cylindriques) peut s'écrire comme suit :

$$\Delta V = \frac{1}{r}\frac{\partial V}{\partial r} + \frac{\partial^2 V}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial z^2} \quad \text{(II-21)}$$

Les bilans de densités de charge sont calculés aux centres des cellules. Maintenant, pour savoir le bilan de équivalent au nœud commun (i,j), on multiplions chaque densité par son poids de pondération, ce dernier est dépond de la géométrie des cellules (figure II.9).

$$\begin{aligned} \rho_{i,j} &= p_1.\rho_1 + p_2.\rho_2 + p_3.\rho_3 + p_4.\rho_4 \\ p_1 = p_2 &= \frac{1}{2}\frac{\Delta r_{i-1}}{\Delta r_i + \Delta r_{i-1}} \\ p_3 = p_4 &= \frac{1}{2}\frac{\Delta r_i}{\Delta r_i + \Delta r_{i-1}} \end{aligned} \quad \text{(II-22)}$$

En fin, la discrétisation du l'équation de poisson au tour du point (i,j) est donnée comme suit :

$$\frac{1}{r_i}\frac{V_{i+1,j} - V_{i-1,j}}{\Delta r_i + \Delta r_{i-1}} + \frac{\Delta r_{i-1} V_{i+1,j} + \Delta r_i V_{i-1,j} - (\Delta r_i + \Delta r_{i-1}) V_{i,j}}{\Delta r_i^2 \Delta r_{i-1}}$$

$$+ \frac{V_{i,j+1} - 2V_{i,j} + V_{i,j-1}}{\Delta z^2} = -\frac{\rho_{i,j}}{\varepsilon_0} \quad \text{(II-23)}$$

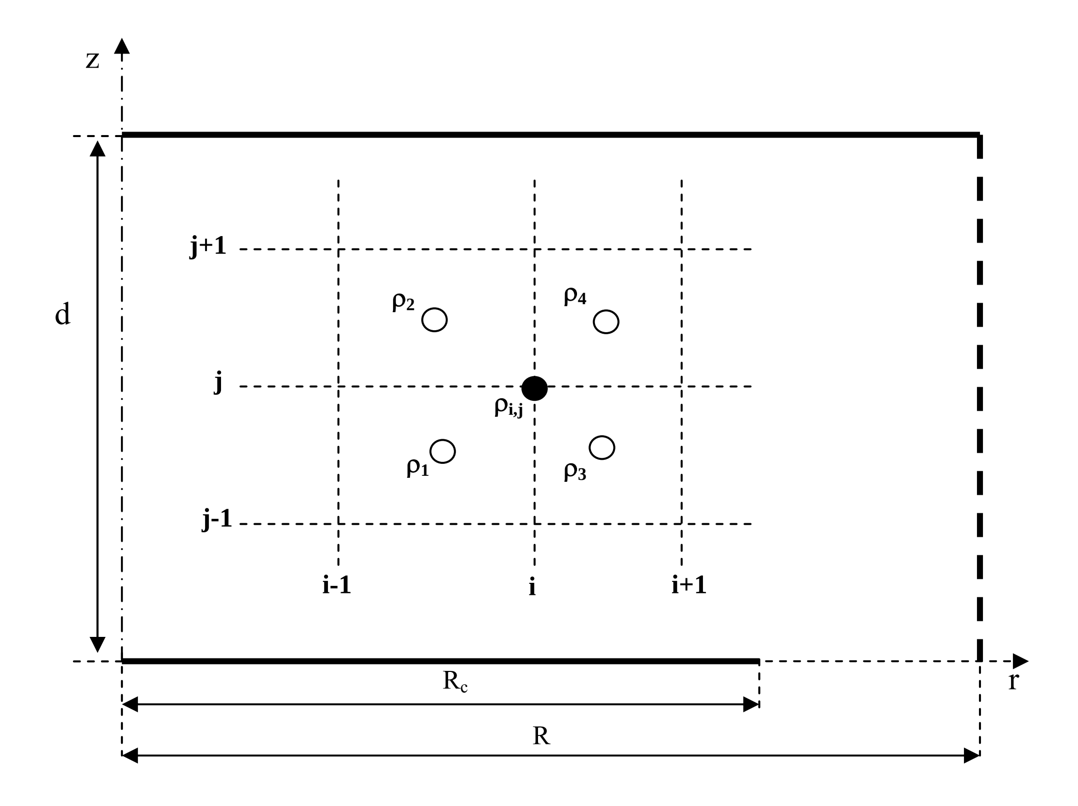


Fig. II-9 : Schéma Montre la pondération de la densité de la charge des cellules adjacentes au nœud commun.

II.3.2.2.1 Conditions aux limites

A cause de la symétrie de révolution. La condition physique sur le potentiel au centre de la décharge (centre du cylindre) est : $\frac{\partial V}{\partial r}=0$

À la grille latérale et l'anode ce potentiel est considéré nul. Par contre, la cathode est soumise sous le potentiel (V_C) de la source radiofréquence plus le potentiel d'auto-polarisation. $V_C = V_{rf} + V_{dc}$. Au point (r) entre la cathode et la grille latérale le potentiel est donné par l'expression :

$$V(r) = V_c + V_{dc} - \frac{\ln\left(r/R_C \right)}{\ln\left(R/R_c \right)} \quad \text{(II-24)}$$

Où R_c est le rayon de la cathode

II.3.2.2.2 Calcul du champ électrique

Après de calculer le potentiel aux nœuds. Les composantes du champ électrique axial et radial sont calculées on adoptant les relations suivantes :

1- ***Aux nœuds*** :

$$Ez_{i,j} = -\frac{V_{i,j+1} - V_{i,j-1}}{2\Delta Z} \text{ ,i=2..m, j=2..n}$$
$$Er_{i,j} = -\frac{V_{i+1,j} - V_{i-1,j}}{\Delta r_i + \Delta r_{i-1}} \text{ ,i=2..m, j=2..n} \quad \text{(II-25)}$$

2- A la cathode

$$Ez_{i,1} = -\frac{-3V_{i,1} + 4V_{i,2} - V_{i,3}}{2\Delta Z}$$
$$Er_{i,1} = 0 \quad \text{(II-26)}$$

3- A l'anode

$$Ez_{i,n+1} = \frac{-3V_{i,n+1} + 4V_{i,n} - V_{i,n-1}}{2\Delta Z} \quad \text{i=1..m+1}$$
$$Er_{i,n} = 0 \quad \text{(II-27)}$$

4- A la grille latérale

$$Ez_{m+1,j} = 0$$
$$Er_{m+1,j} = \frac{-3V_{m+1,j} + 4V_{m,j} - V_{m-1,j}}{\Delta r_i + \Delta r_{i-1}} \quad \text{j=1..n+1} \quad \text{(II-28)}$$

5- Au centre du cylindre

$$Ez_{1,j} = \frac{V_{j+1} - V_{j-1}}{2\Delta z} \quad \text{j=1..n}$$
$$Er_{1,j} = 0 \quad \text{(II-29)}$$

II.4 Traitement des collisions

Dans ce qui suit, nous allons présenter l'approche particulaire, basée sur la méthode de Monte Carlo, que nous avons développée pour étudier le transport des particules chargées (méthode de libre parcours). Ainsi la méthode qui se base sur le temps de vol libre. En commençant par un rappel sur les nombres aléatoires.

II.4.1 Nombres aléatoires

Les nombres aléatoires sont générés grâce à des algorithmes simples (*Press* [Pr-1], *Marsaglia* [Ma-1], *Matsumoto* [Ma-2], *Park* [Pa-1]) qui permettent de créer une séquence de nombres rationnels compris entre 0 et 1. Cette séquence est assimilée à une suite $\{R_i\}$ de nombres pseudo-aléatoires qui sont uniformément distribués dans l'intervalle [0,1]. L'utilisation de cette suite permet de sélectionner un évènement à partir d'une loi de probabilité p(x), continue ou discrète, reliée au phénomène physique que l'on cherche à simuler (phénomène stochastique). Il faut ainsi, dans le cas où cette loi de probabilité est continue, effectuer une transformation de la distribution uniforme sur l'intervalle [0,1] en une distribution quelconque sur un intervalle [a,b].

Si p(x) est normalisée sur l'intervalle [a,b], c'est à dire si :

$$\int_a^b p(x)\,dx = 1 \qquad \text{(II-30)}$$

Il est alors possible de déterminer le nombre réel X_i tel que :

$$\int_0^{R_i} u(x)\,dx = \int_a^{X_i} p(x)\,dx = R_i \qquad \text{(II-31)}$$

Où u(x) est la distribution uniforme et égale à 1 (dans le cas où l'intervalle est [0, 1]) sur laquelle sont tirés les nombres R_i. Parce que la densité de probabilité p(x) est positive, à chaque nombre R_i correspond un nombre X_i unique. L'inconnue X_i du problème physique sera déterminée grâce à la relation précédente.

Dans le cas où la loi de probabilité du phénomène physique est une loi discrète, définie par une probabilité $p(e_i)$ d'occurrence de l'événement e_i, et normalisée suivant la relation :

$$\sum_{i=1}^{n} p(e_i) = 1 \qquad \text{(II-32)}$$

Où n est le nombre d'événements possibles, l'événement e_j aura lieu si :

$$\sum_{k=1}^{j-1} p(e_k) < R_i \leq \sum_{k=1}^{j} p(e_k) \qquad \text{(II-33)}$$

Il existe plusieurs algorithmes de génération de nombre aléatoires. Lors de tous nos travaux, nous avons utilisé *la fonction Fortran Ran* (*Press* [Pr-1]) basée sur la technique de congruences multiplicatives. Il est à noter que cette technique nécessite la fixation arbitraire d'un nombre entier, appelé germe, et qu'à ce germe correspond une séquence de nombres aléatoires. Changer cette séquence implique de changer le germe. Les collisions entre les électrons et les neutres d'un gaz est le processus le plus important à la définition des propriétés du plasma. Ils sont aussi les particules les plus pénalisantes en temps de calcul dans les technique PIC/MC à cause de leurs grandes mobilités, où ils demandent une discrétisation très fine en temps.

Skullerud, 1968 [Sk-1] a introduit le terme «collision nulle », il a représenté par sa section efficace choisie d'une manière complémentaire pour rendre la fréquence totale de collision constante. Généralement, cette fréquence totale vaut la fréquence maximale de collision (υ_{max}) (*van der Velden* [Ve-1], *Yousfi* [Yo-1]). Des autres chercheurs ont utilisé des technique MC où il ont calculé la probabilité de collision a partir de libre parcours moyen, ces techniques sont pénalisantes en temps de calcul et au même temps nécessitent le tirage de deux nombres aléatoires pour savoir le type de collision (*Itoh* [It-1], *Herec* [He-1]). Dans cette thèse, on utilise une technique PIC MC où on estime directement le libre parcours au lieu du temps de vol libre.

II.4.2 Méthode du libre parcours

Considérant qu'une particule chargée a N type de collision, la section efficace totale est donnée par la relation suivante :

$$\sigma_T(\varepsilon)=\sum_{i=1}^{N}\sigma_i(\varepsilon) \qquad \text{(II-34)}$$

Avec ε : est l'énergie cinétique de particule incidente et $\sigma_i(\varepsilon)$: est la section efficace de la collision de type i. Le libre parcours entre deux collisions dépend de la densité des neutres n(r) au point r et l'énergie de la particule incidente.

$$\lambda_{vol}(\varepsilon)=\frac{1}{n(r).\sigma_T(\varepsilon)} \qquad \text{(II-35)}$$

Soit P(s) est la probabilité pour que la particule se déplace sans effectuer une collision, la probabilité de collision au point s est donnée par la relation suivante:

$$1-P(s)=1-\exp(-\int_0^{s_{vol}} n(s)\sigma_T(\varepsilon)ds) \qquad \text{(II-36)}$$

Où s : est la distance parcourue après la dernière collision.

Pour déterminer la distance où la particule va effectuer une collision, il est nécessaire de calculer à chaque pas en temps, la section efficace de collision car l'énergie de la particule se change. Puis, on doit intégrer l'équation (II-36) le long de la trajectoire de la particule, ce qui demande plus de temps de calcul. Pour résoudre ce problème on introduit les collisions nulles (voir figure II.10).

Maintenant, le libre parcours minimal pour toutes les collisions que soit les collisions réelles ou fictives est donné par la relation suivante :

$$\lambda_{min}=\frac{1}{\max_{r,\varepsilon}\{\ n(r).\sigma_T(\varepsilon)\ \}} \qquad \text{(II-37)}$$

Dans le cas où la distribution des neutres est uniforme l'équation (II-37) devient :

$$\lambda_{min}=\frac{1}{n.\sigma_{T,max}} \qquad \text{(II-38)}$$

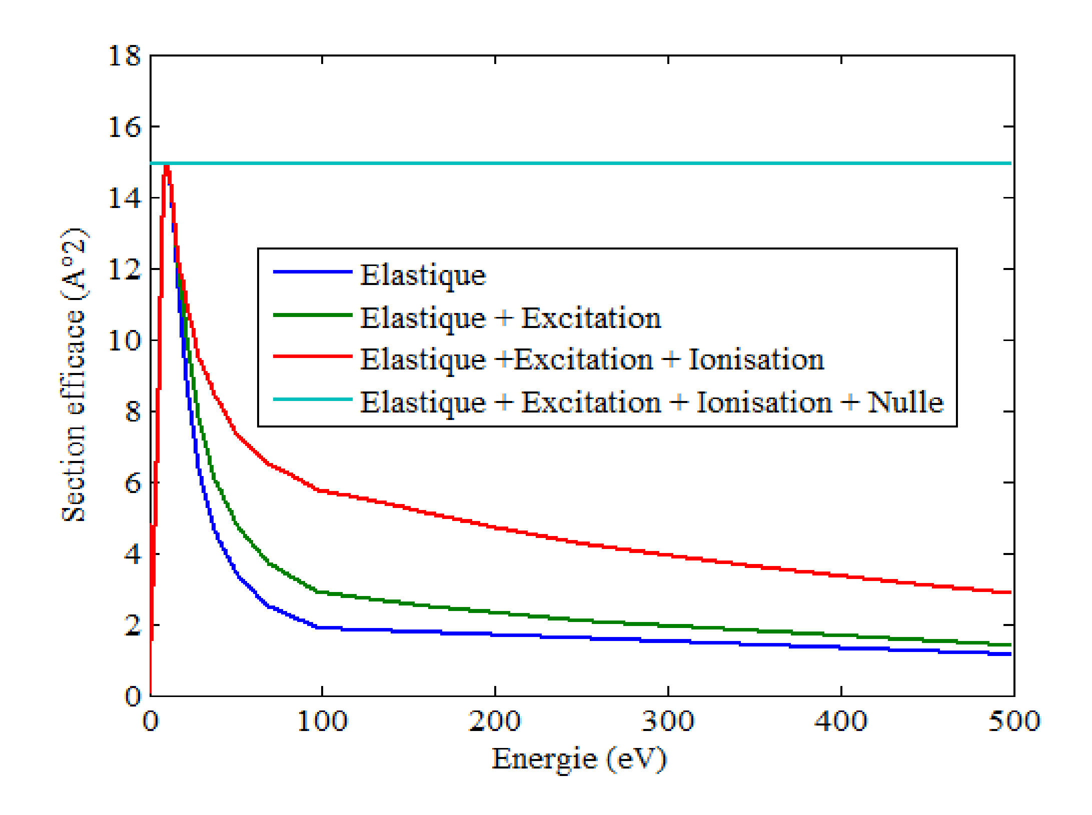


Fig. II-10 : Sections efficaces de collision électron-Argon avec les collisions nulles

Pour obtenir la distance parcourue sans collision S_{vol} , c'est à dire la distance où la collision sera effectuée, on pose 1-P(s) =R, avec R est un nombre aléatoire compris entre 0 et 1. L'équation (II-36) donne :

$$s_{vol} = -\lambda_{min} \ln(1-R) \qquad \text{(II-39)}$$

Pour chaque particule, on calcule le libre parcours S_{vol} à partir de tirage d'un nombre aléatoire, la collision après ce libre parcours peut être réelle ou fictive, pour savoir le type de collision, on remplace les collisions nulles par une section efficace complémentaire on trouve :

$$\begin{cases} \dfrac{1}{\lambda_{min}} = n.(\sigma_1 + \sigma_2 + \ldots. + \sigma_N + \sigma_{nulle}) \\ \qquad = \dfrac{1}{\lambda_1} + \dfrac{1}{\lambda_2} + \ldots. + \dfrac{1}{\lambda_N} + \dfrac{1}{\lambda_{nulle}} \\ 1 \;\; = \dfrac{\lambda_{min}}{\lambda_1} + \dfrac{\lambda_{min}}{\lambda_2} + \ldots. + \dfrac{\lambda_{min}}{\lambda_N} + \dfrac{\lambda_{min}}{\lambda_{nulle}} \end{cases} \qquad \text{(II-40)}$$

La fraction de probabilité de chaque type de collision est donnée par la relation suivante :

$$P_i = \frac{\lambda_{min}}{\lambda_i} = \frac{\sigma_i(\varepsilon)}{\sigma_{T,max}} \tag{II-41}$$

$$\begin{cases} 0 \leq R \prec \dfrac{\sigma_1}{\sigma_{T,max}} & \text{collision de type 1} \\ \dfrac{\sigma_1}{\sigma_{T,max}} \leq R \prec \dfrac{\sigma_1+\sigma_2}{\sigma_{T,max}} & \text{collision de type 2} \\ \dots\dots\dots\dots & \\ \dfrac{\sum_i^N \sigma_i}{\sigma_{T,max}} \prec R & \text{collision nulle} \end{cases} \tag{II-42}$$

avec R : est un nombre aléatoire compris entre 0 et 1.

Dans le cas d'un mélange de m gaz (par exemple gaz G1, gaz G2,…, Gm). La section efficace totale de collision est :

$$\sigma_T(\varepsilon) = p_1.\sigma_{T,G1}(\varepsilon) + p_2.\sigma_{T,G2}(\varepsilon) + \dots + p_m.\sigma_{T,Gm}(\varepsilon) \tag{II-43}$$

Où p_j est le rapport de la pression partielle du gaz Gj à la pression totale. La probabilité de chaque type de collision i avec le gaz j (caractérisée par sa section efficace $\sigma_{i,j}$) est donnée par la relation suivante :

$$P_{i,j} = \frac{p_j.\sigma_{i,j}}{\max\{\sigma_T(\varepsilon)\}} \tag{II-44}$$

II.4.3 Méthode de Temps de vol libre

Cette méthode au contraire de la méthode du libre parcours, elle est basé sur la fréquence de collision maximale. La fréquence est fonction de la densité des neutres n(r), la section efficace totale $\sigma_T(\varepsilon)$ et l'énergie de la particule projectile.

$$\upsilon(r,\varepsilon) = n(r).\sigma_T(\varepsilon).\sqrt{\frac{2\varepsilon}{M}} \qquad \text{(II-45)}$$

Avec M est la masse de la particule projectile et ε son énergie. La probabilité collision après un temps de vol t_v est donnée par l'expression suivante :

$$1\text{-}P(t_v)=1\text{-}\exp(-\int_0^{t_v} \upsilon_T(\varepsilon)dt) \qquad \text{(II-46)}$$

De même façon pour déterminer le temps de vol libre, il faut intégrer l'équation précédente. Malheureusement, la fréquence de collision est fonction de l'énergie de la particule projectile et par suite la nécessité de calculer la fréquence de collision après chaque pas en temps. Pour l'accélération du calcul ont introduit la collision nulle qui a une fréquence complémentaire permet de rendre la fréquence totale de collision constante et vaut la fréquence totale maximale de collision réelle υ_{max}. La figure suivante montre le choix de la fréquence de collision totale maximale des électrons dans l'argon.

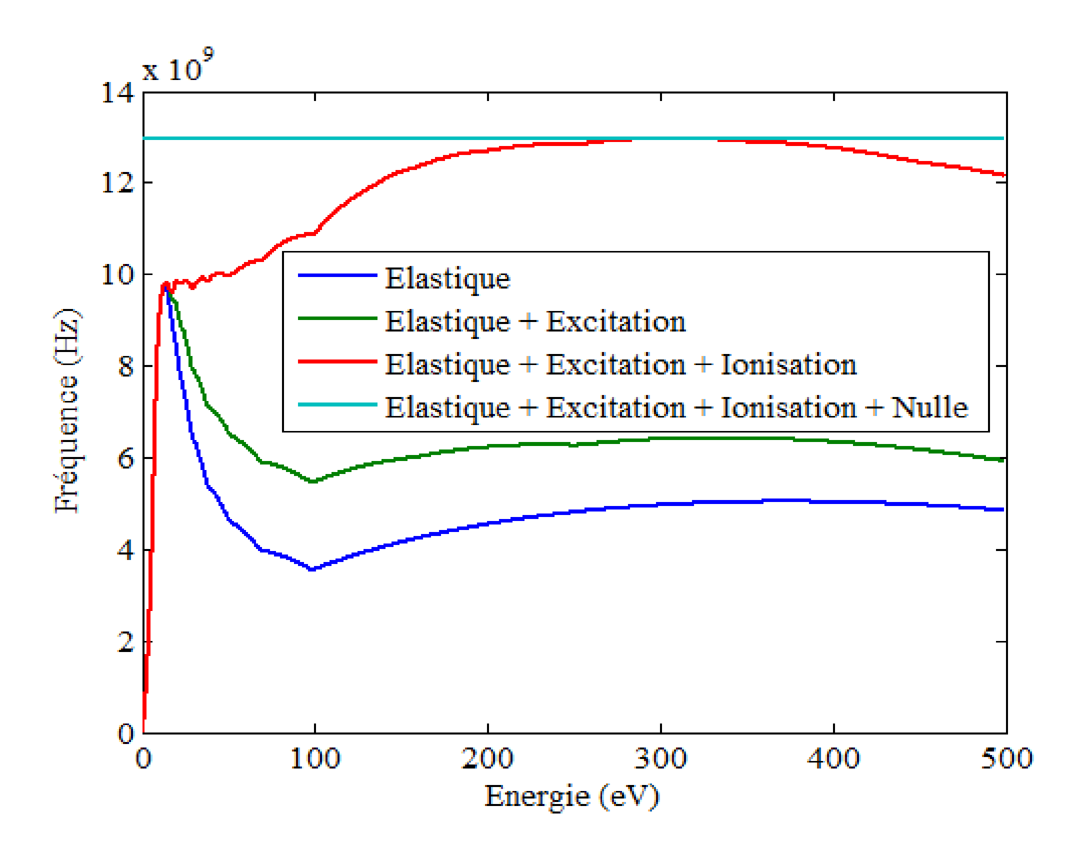


Fig. II-11 : Fréquence de collision électron-Argon neutre pour une pression de 1 Torr

Le temps de vol libre adopté est :

$$t_{vol} = -\frac{\ln(1-R)}{\upsilon_{max}} \tag{II-47}$$

Où R est un nombre aléatoire uniformément distribué entre 0 et 1. La fraction de probabilité de chaque type de collision est donnée par :

$$P_i = \frac{\upsilon_i}{\upsilon_{max}} \tag{II-48}$$

$$\begin{cases} 0 \le R \prec \dfrac{\upsilon_1}{\upsilon_{max}} & \text{collision de type 1} \\ \dfrac{\upsilon_1}{\upsilon_{max}} \le R \prec \dfrac{\upsilon_1+\upsilon_2}{\upsilon_{max}} & \text{collision de type 2} \\ \dots\dots\dots\dots\dots & \\ \dfrac{\sum_i^N \upsilon_i}{\upsilon_{max}} \prec R & \text{collision nulle} \end{cases} \tag{II-49}$$

où R : est un nombre aléatoire compris entre 0 et 1.

De même façon que dans le cas du libre parcours, dans le cas d'un mélange de m gaz (par exemple gaz G1, gaz G2,…, Gm). La fréquence totale de collision est :

$$\upsilon_{max} = \max\left\{\sum_{j=1}^{m} n_j(r).\sigma_{T,Gj}(\varepsilon).\sqrt{\frac{2\varepsilon}{M}}\right\} \tag{II-50}$$

Où $n_j(r)$ est la densité du gaz Gj, ε : l'énergie de la particule projectile et M sa masse. Si le mélange est uniforme $n_j(r) = p_j.n$ (n : la densité totale de G1, G2,.., Gm). La relation précédente peut s'écrire comme suit :

$$\upsilon_{max} = n.\max\left\{\sum_{j=1}^{m} p_j.\sigma_{T,Gj}(\varepsilon).\sqrt{\frac{2\varepsilon}{M}}\right\} \tag{II-51}$$

Enfin, la probabilité de chaque type de collision i avec le gaz Gj (caractérisée par sa fréquence $\upsilon_{i,j}$, calculée pour p_i=1) est :

$$P_{i,j} = \frac{p_j.\upsilon_{i,j}}{\upsilon_{max}} \qquad \text{(II-52)}$$

II.4.4 Vitesse de particule cible

Les vitesses des particules cibles (atome ou molécules) du gaz ont une grande influence sur la cinétique des particules incidentes surtout les ions. On considère que dans le cas des collisions électron-neutre, les neutres sont immobiles. En revanche, dans le cas des collisions Ion-neutre, les neutres (cibles) sont considérés mobiles avec une distribution maxwellienne à la température du gaz. Où la fonction de distribution des vitesses des particules de masse M suivant l'axe azimutal (r) (par exemple) est donnée par la forme suivante :

$$f(v_r) = \left(\frac{M}{2\pi k_B T}\right)^2 \exp\left[-\frac{M(v_r^2)}{2 k_B T}\right] \qquad \text{(II-53)}$$

avec $v_r^2 = v_x^2 + v_y^2$. La vitesse de la particule cible est choisi au hasard. Le module de cette vitesse suivant l'axe (r) est déterminé par la relation :

$$R_1 = \frac{\int_0^{v_r} f(v_r).2.\pi.v_r.dv_r}{\int_0^{\infty} f(v_r).2.\pi.v_r.dv_r} \qquad \text{(II-54)}$$

Où R_1 est un nombre aléatoire tiré au hasard entre 0 et 1. Après l'intégration on trouve :

$$v_r = \sqrt{-2k_B T \log(R_1)}$$

avec:

$$v_x = v_r.\cos(\psi)$$
$$v_y = v_r.\sin(\psi) \qquad \text{(II-55)}$$

Posant $\Psi = 2.\pi.R_2$, où R_2 est un nombre aléatoire compris entre 0 et 1.

La composante v_z est déterminé de la même manière. Ces composantes suivant les axes cartésiennes x, y, z sont données par les expressions suivantes :

$$v_x = \sqrt{-2 k_B T \log(R_1)} \cos(2\pi R_2)$$

$$v_y = \sqrt{-2 k_B T \log(R_1)} \sin(2\pi R_2) \qquad \text{(II-56)}$$

$$v_z = \sqrt{-2 k_B T \log(R_3)} \sin(2\pi R_4)$$

Où R_1, R_2, R_3, R_4 des nombres aléatoires distribués uniformément entre 0 et 1, k_B : la constante de Boltzmann et T la température du gaz.

II.4.5 Vitesse de particule projectile après collision

Dans le cas de collision nulle, la vitesse de la particule sera inchangée, la particule continue son mouvement dans la même trajectoire. En revanche, dans le cas d'une collision réelle, la vitesse de la particule après la collision dépond du type de collision effectuée. Pour déterminer cette vitesse, on commence par écrire l'équation de la quantité du mouvement dans le repère de laboratoire.

$$m_p \vec{v}_p + m_c \vec{v}_c = m_p \vec{v}_p^{'} + m_c \vec{v}_c^{'} \qquad \text{(II-57)}$$

où m_p , v_p et m_c , v_c sont respectivement la masse et la vitesse de la particule projectile, la masse et la vitesse de la particule cible juste avant la collision. v_p' et v_c' : sont respectivement la vitesse de la particule projectile et la vitesse de la particule cible juste après la collision.

La vitesse de chaque particule après la collision, dans le cas où la collision est conservative (pas de perte d'énergie) peuvent s'écrire comme suit :

$$\vec{v}_p^{'} = \frac{m_p}{m_p + m_c}\vec{v}_p + \frac{m_c}{m_p + m_c}\vec{v}_c + \frac{m_c}{m_p + m_c}\vec{v}_r^{'}$$
$$\vec{v}_c^{'} = \frac{m_p}{m_p + m_c}\vec{v}_p + \frac{m_c}{m_p + m_c}\vec{v}_c - \frac{m_p}{m_p + m_c}\vec{v}_r^{'} \qquad \text{(II-58)}$$

Où $v_r^{'}$ est l'énergie relative après la collision, avant la collision s'écrit $\vec{v}_r = \vec{v}_p - \vec{v}_c$

La figure II-12 montre une représentation schématique de la vitesse relative d'une particule chargée (électron ou ion) avant et après la collision dans le référentiel du laboratoire (x,y,z) et du centre de masse (x',y',z').

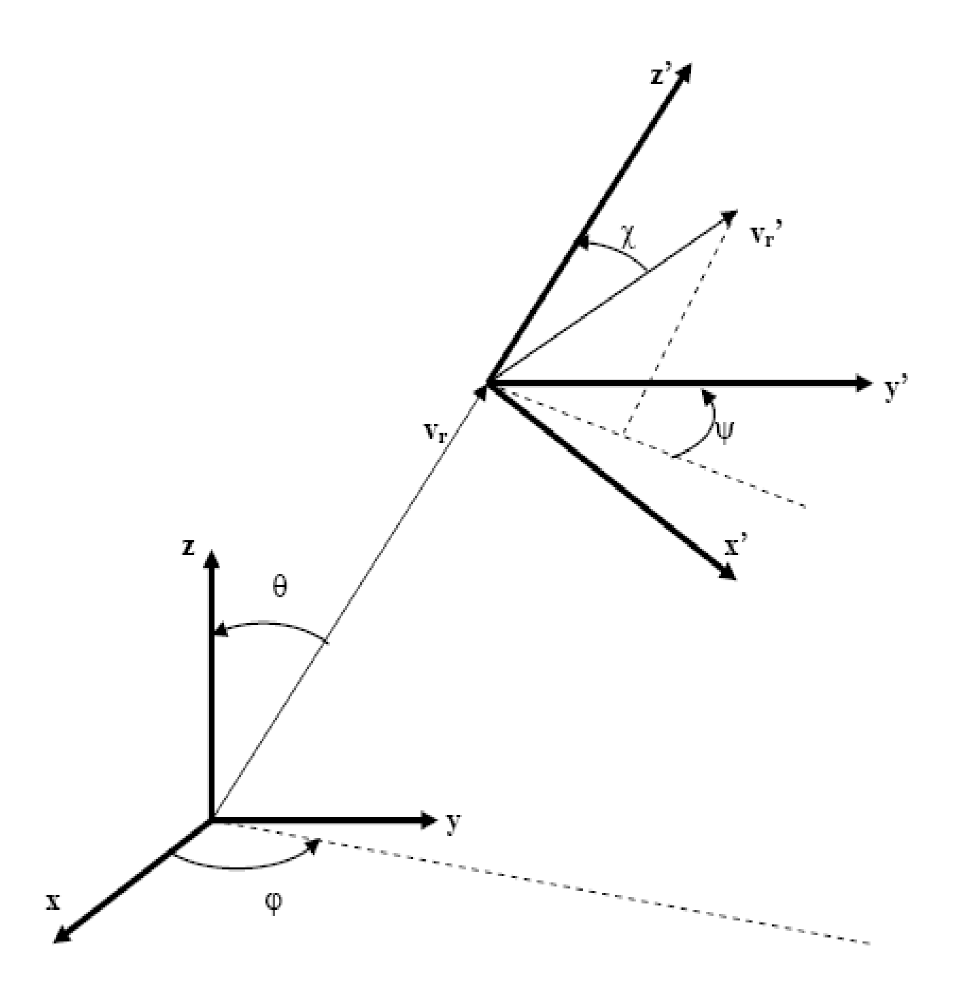


Fig. II-12 : Représentation schématique de la vitesse relative avant et après la collision dans le référentiel du laboratoire

Où θ et φ sont respectivement les angles axial et azimutal de vecteur vitesse relative dans le repère de laboratoire. Les angles χ et ψ sont les angles axial et azimutal dans le repère du centre de masse, la détermination de ces derniers angles se fait par simple tirage de deux nombre aléatoire (R_χ et R_ψ) distribués uniformément entre 0 et 1. L'angle azimutal est considéré isotrope quelque que soit le type de projectile (ion ou électron). Par contre, l'angle axial est considéré isotrope dans le cas des ions et fonction de l'énergie ε dans le cas des électrons (*Vahedi* [Va-1]).

$$\begin{aligned} &\psi = 2\pi R_{\psi} \\ &\chi = \mathrm{acos}\left(1 - 2R_{\chi}\right) \text{ cas des ions} \\ &\chi = \mathrm{acos}\left(\frac{2 + \varepsilon - 2(1+\varepsilon)^{R_{\chi}}}{\varepsilon}\right) \text{ cas des électrons} \end{aligned} \qquad \text{(II-59)}$$

La détermination des composantes des vitesses après la collision dans le repère du laboratoire se fait, en utilisant la transformation classique d'Euler plus de détails voir (*Yousfi* [Yo-1]).

$$\begin{pmatrix} v'_{rx} \\ v'_{ry} \\ v'_{rz} \end{pmatrix} = v_r \begin{pmatrix} \cos\chi \sin\theta \cos\varphi - \sin\chi \sin\psi \sin\varphi + \sin\chi \cos\psi \cos\theta \cos\varphi \\ \cos\chi \sin\theta \sin\varphi + \sin\chi \sin\psi \cos\varphi + \sin\chi \cos\psi \sin\theta \cos\varphi \\ \cos\chi \cos\theta - \sin\chi \cos\psi \sin\theta \end{pmatrix} \qquad \text{(II-60)}$$

Maintenant dans le cas où la collision n'est pas conservative. Alors, une perte d'énergie de la particule projectile est supposée être uniformément répartie sur les trois composantes de sa vitesse.

Si η représente le facteur de perte en vitesse, et si $\Delta\varepsilon$ est l'énergie perdue durant la collision, alors la nouvelle vitesse avant la déviation s'écrive :

$$\vec{v}_{pp} = \eta\, \vec{v}_p \qquad \text{(II-61)}$$

v_{pp} la nouvelle vitesse de la particule projectile avant la déviation dans le repère du centre de masse avec :

$$\eta = \sqrt{1 - \frac{2\,\Delta\varepsilon}{m_p\, v_p^2}} \qquad \text{(II-62)}$$

II.4.6 Les Processus collisionnels considérés

II.4.6.1 Collision élastique

Par définition lors d'une collision élastique, l'énergie interne des particules entrent en collision ne subit aucune modification. Il y a simplement un changement de direction des

particules, avec une redistribution des énergies de translation entre les deux. Ceci se traduit par particules la conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie cinétique.

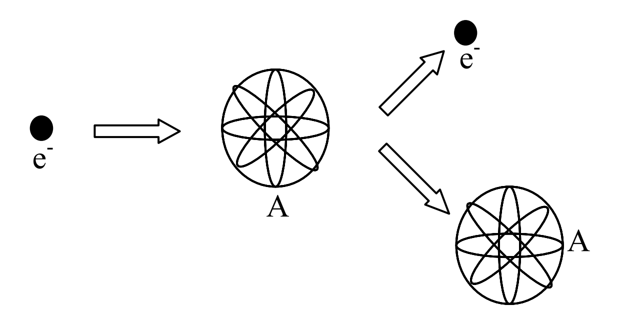


Fig. II-13 : Représentation simplifiée d'une collision élastique électron- Atome

Dans le cas où le neutre cible est supposé être au repos avant la collision, il est possible de relier la fraction d'énergie conservée par la particule incidente lors de la collision, à l'angle de déviation χ

$$\frac{\varepsilon_p^{'}}{\varepsilon_p} = 1 + 2\frac{m_p\, m_c}{\left(m_p + m_c\right)^2}\left[\cos\chi - 1\right] \qquad \text{(II-63)}$$

Si le projectile et la cible ont la même masse, ce rapport s'écrit :

$$\frac{\varepsilon_p^{'}}{\varepsilon_p} = \frac{1}{2}\left[\cos\chi + 1\right] \qquad \text{(II-64)}$$

On peut montrer aussi que lors d'une collision élastique. Le module de la vitesse relative est conservé. Mais il y a une redistribution des directions

$$\frac{1}{2}\mu_r\, v_r^2 = \frac{1}{2}\mu_r\, v_r^{'2} \text{ , où } \mu_r = \frac{m_p\, m_c}{m_p + m_c} \text{ est la masse réduite}$$

Si la collision considérée est entre un électron de masse m_e et un neutre comme la montre la figure précédente, en tenant compte le faible rapport des masses. La fraction d'énergie cinétique emportée par le neutre est donc de l'ordre de 4 m_e/m_c.

II.4.6.2 Collision de transfert de charge

Ce type de réaction a lieu entre un ion et un atome (ou une molécule). Si l'on se déplace sous l'action d'un champ électrique dans un gaz parent (par exemple l'ion AB^+ dans un gaz AB), le transfert de charge est dite résonant ou symétrique. Par contre, le transfert de charge est dit non-résonant ou asymétrique lorsque l'ion se déplace dans un gaz non-parent (par exemple l'ion A^+ dans le gaz AB). Au cours d'un transfert de charge résonant l'ion énergétique A^+ devient un neutre rapide et le neutre B devient un ion où se commence sa vie par l'énergie thermique du gaz.

Dans le plasma froid (non-thermique), ce processus joue un rôle important sur l'énergie moyenne des ions, il permet de transformer un ion rapide en un ion lent, pour plus d'information voir (*Hennad* [He-2], *Yousfi* [Yo-2]). La figure suivante montre un schéma simplifiée de transfert de charge non-résonant entre l'ion A^+ et le gaz atomique B.

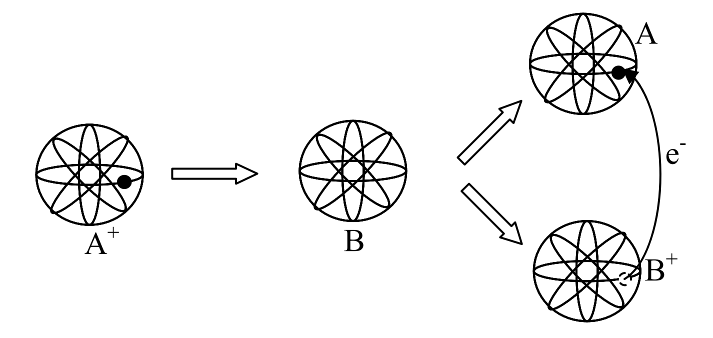


Fig. II-14:Représentation simplifiée d'une collision de transfert de charge non-résonant

II.4.6.3 Collision inélastique conservative

On appel collision élastique conservative. Quand, lors d'une collision, l'énergie interne de l'une des particules entrent en collision sera modifié. Par contre, la nature de ces deux particules ne subit aucun changement (excitation, vibration, rotation, .. etc.).

Les processus d'excitation, deviens significatifs lorsque le champ réduit augmente, cela entraine une augmentation de l'énergie des particules projectiles au-delà du seuil d'excitation. Dans la figure suivante on représente le schéma simplifiée de l'excitation par impact électronique, où l'électron effectue une collision avec l'électron de l'orbitale de la particule cible. Si l'énergie transmet à cet électron est supérieure ou égale au seuil

d'excitation ε_{ex}, la particule cible devient en état excité. Quand il y a une désexcitation on voit la lumière émise. Les nivaux métastables ne peuvent pas rayonner pour atteindre un niveau plus bas - les atomes restent "piégés" jusqu'à une collision électronique arrive pour le "détruire".

Dans ce travail, les collisions inélastiques considérées sont seules à partir de niveau fondamental de l'atome ou la molécule, pour plus d'information voir (*Hastel* [Ha-1], *Grysinski* [Gr-1]).

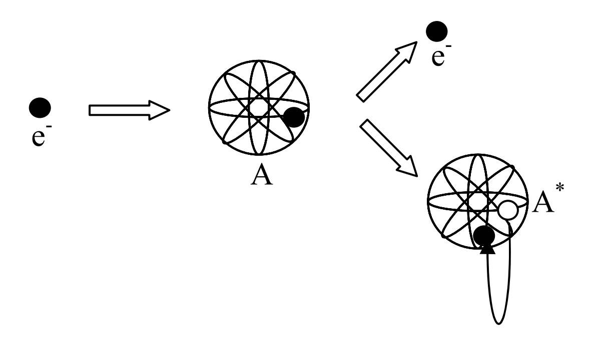


Fig. II-15 : Représentation simplifiée d'une collision d'excitation

II.4.6.4 Collision d'ionisation

L'ionisation et le processus le plus important pour maintenir la décharge électrique. L'ionisation par impact électronique de la particule cible donne naissance à un électron et un ion positif. L'électron produit sera ensuite accéléré par le champ électrique. Ce processus de création d'électrons est fortement dépend au champ réduit dans les gaines. Dans le cas d'un gaz moléculaire on peut aussi avoir un cas où l'impact de l'électron provoque une dissociation d'une molécule, où une des particules résultantes est en forme ionique

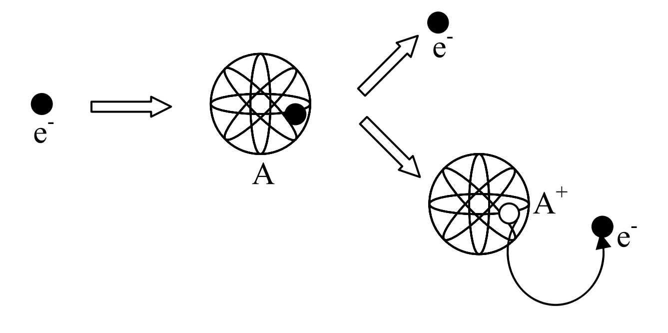


Fig. II-16 : Représentation simplifiée de l'ionisation par impact électronique

Dans notre modèle, le traitement de l'ionisation s'effectué comme suit :

L'électron projectile de l'énergie ε_1 cède à l'atome (ou molécule) cible une énergie égale au seuil de l'ionisation ε_{ion}. L'énergie résiduelle (ε_1 - ε_{ion}) est répartie entre l'électron projectile et l'électron éjecté. Par simple tirage d'un nombre aléatoire R_{ion}, on peut déduire les énergies des deux électrons où :

$$\varepsilon_{ej} = R_{ion} \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_{ion}}{2}$$
$$\varepsilon_1^{'} = \varepsilon_1 - \varepsilon_{ion} - \varepsilon_{ej} \qquad \text{(II-65)}$$

Ces deux relations donnent les modules des vitesses des électrons après la collision ionisante. En ce qui concerne les directions dans le repère du centre de masse, l'électron projectile est diffusé suivant la direction (χ,ψ). Tandis que l'on suppose que l'électron éjecté est dévié dans le même azimut et faisant un angle $\pi/2$ avec l'électron projectile (Alkaa [Al-1]).

Dans le cas d'ionisation par impact électronique, il y a plus aussi la création d'un ion positif. Ce dernier, prend les paramètres de la particule cible (vitesse, direction, énergie). Un autre processus peut intervenir où l'électron peut effectuer une collision dissociative et ionisante, ce type de collision de collision appelé : *Ionisation dissociative*, il est possible que dans le cas où la cible est une molécule

II.4.6.5 Collision d'attachement

Dans certains gaz, les atomes ou les molécules ont une affinité pour les électrons, et forment des ions négatifs. Ce processus est très important pour les gaz électronégatifs O_2, Cl, F..., parce qu'il modifie le transport dans le plasma (les porteurs de charge négatifs sont maintenant plus lourds).

Le schéma simplifié du processus d'attachement est donnée sur la figure II-12. Après une collision d'attachement, l'électron va s'accrocher sur une orbitale de la particule cible A pour donner un ion négatif A^-.

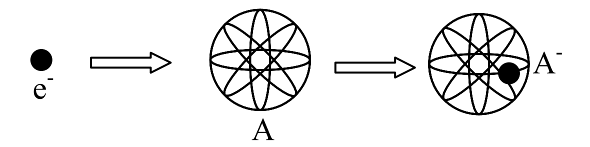


Fig. II-17 : Représentation simplifiée de l'attachement direct.

L'attachement est dit dissociatif lorsqu'il produit un ion négatif et une particule neutre. Du point du vue traitement par notre code, l'ion négatif repart avec les paramètres du gaz (distribution maxwellienne isotrope). Ce processus dépend en grande partie de l'énergie des électrons dans la colonne positive, il est dominant pour des énergies électroniques relativement faibles.

II.4.6.6 Collision de détachement

C'est un processus collisionnel ayant lieu en présence des ions négatifs. Dans ce cas, l'ion négatif entrant en collision avec le neutre, libère un électron ce qui entraine sa neutralisation. Un autre type de détachement peut intervenir, ce type appelé : détachement par impact électronique. Il est similaire à l'ionisation par impact électronique (*Lieberman* [Li-1]), où l'électron entre en collision avec un ion négatif libérant un électron et neutralisant l'ion.

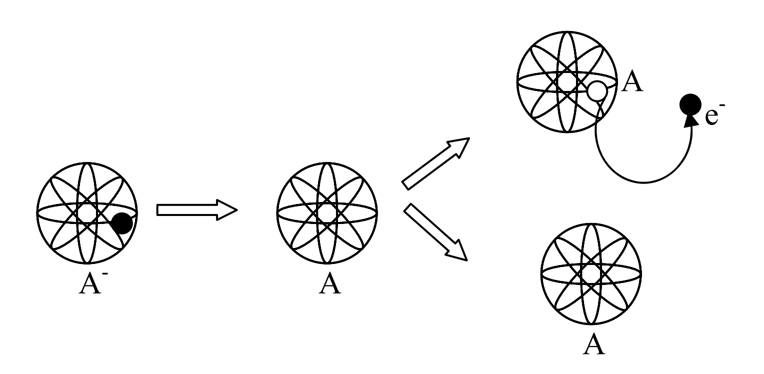


Fig. II-18 : Représentation simplifiée détachement

II.4.6.7 Collision de recombinaison

Ce type de réaction ressemble un peu au transfert de charge non-résonant dans le cas de recombinaison entre deux ions positif et négatif. Au cours de la collision, il y a un transfert d'un électron de l'ion négatif à l'ion positif produisant la neutralisation de ces deux ions.

Ce processus est dominant pour la diminution des ions négatifs et par suite la balance de cette espèce dans les décharges basse pression (*Lieberman* [Li-1]). Quand un électron rencontre un ion dans le plasma, il y a une probabilité que l'électron soit capturé par l'ion, surtout si l'énergie de l'électron est relativement faible, ainsi produisant une particule neutre. Il y a différents types de réactions qui peuvent donner lieu à cette “disparition de charges”, et celle qui domine dépend de la température électronique et de la densité électronique.

(a) Recombinaison radiative

La recombinaison radiative est une réaction à deux corps, où l'électron est “capturé” par l'ion. Pour conserver l'énergie et la quantité de mouvement il faut avoir l'émission d'un photon:

$$e + A^{+} \rightarrow A^{*} + h\nu$$
$$A^{*} \rightarrow A + h\nu'$$

On voit que l'énergie du premier photon a une valeur minimale, dépendant du niveau atomique dans lequel l'électron se trouve. Une fois l'électron “capturé”, il y a une “cascade” vers les niveaux plus bas, avec l'émission de raies discrètes.

(b) Recombinaison à 3 corps

A haute densité la recombinaison à 3 corps domine; dans ce cas la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement est assurée par la présence d'un troisième corps (B), normalement un électron:

$$e + A^{+} + B \rightarrow A^{*} + B$$

L'énergie libérée dans le processus de recombinaison est portée par l'électron où cette énergie peut être considérable.

(c) Recombinaison assistée par molécules

Dans certains cas, la présence de molécules excitées peut augmenter énormément le taux de recombinaison. Un exemple pour l'hydrogène et l'oxygène. La présence de H_2^*

(cas d'hydrogène) ou la présence de O_2^* (cas d'oxygène) peut "catalyser" les réactions d'attachement dissociatif:

Exemple 1 : $e + O_2^* \rightarrow O^- + O$ et $O^+ + O^- \rightarrow O + O^*$
Exemple 2 : $e + H_2^* \rightarrow H^- + H$ et $H^+ + H^- \rightarrow H + H^*$

II.4.7 Incidence des ions sur les parois

Dans les décharges radiofréquences, la présence des électrodes est essentielle, et les processus de "surface" déterminent en grande partie les caractéristiques de la décharge. Les particules chargées incidentes sur les parois peuvent être réfléchies par la surface. Lors de la réflexion, les ions alors neutralisés perdent la plus grande partie de leur énergie. Si les ions sont suffisamment énergétiques, ils pourront alors être implantés dans la cible. A ce moment-là, des réarrangements structurels peuvent intervenir au niveau de la cible. Des électrons secondaires peuvent être émis de la cathode sous l'impact du faisceau incident (cas d'une cible métallique). En plus des électrons, des particules de la surface peuvent être arrachées par les particules incidentes si elles sont suffisamment énergétiques : c'est la pulvérisation.

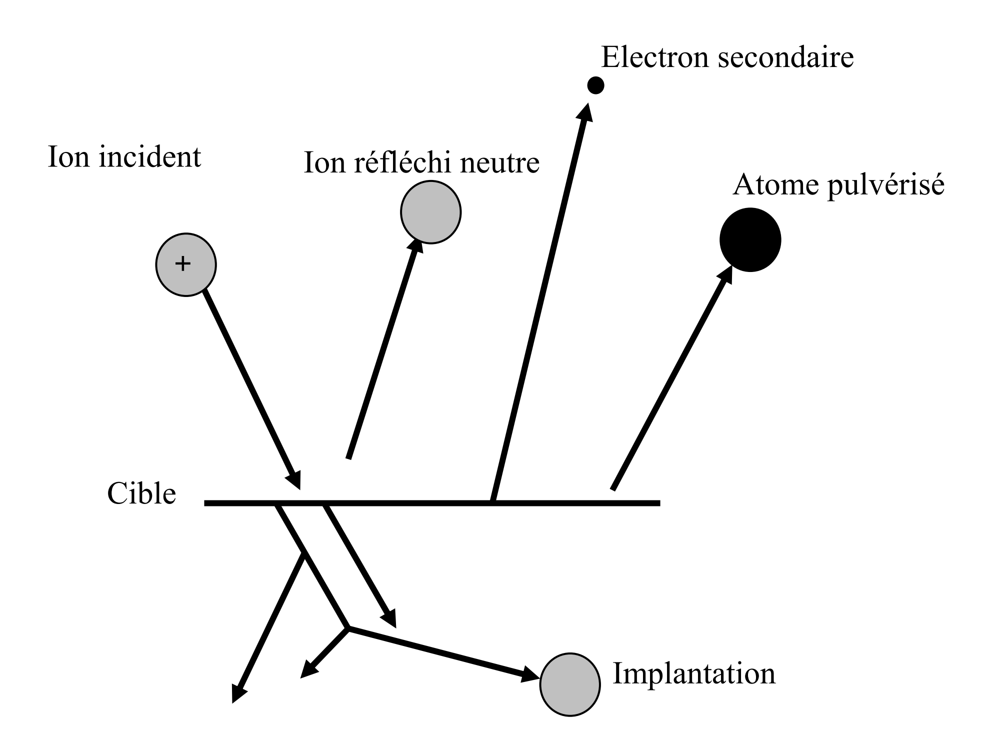


Fig. II-19 : Schéma simple des processus possibles au niveau de la cible

II.5 Conclusion

Dans ce chapitre on a détaillé le modèle particulaire développé dans cette thèse. Ce modèle s'agit de coupler l'équation de Poisson et la méthode de Monte Carlo. Où l'équation de Poisson permet de calculer la distribution spatio-temporelle du champ électrique. En revanche, la méthode de Monte Carlo permet de traiter les collisions de chaque particule chargée. Dans ce modèle on a basé sur le calcul du libre parcours pour but d'optimiser le temps de calcul. Ce modèle particulaire permet de déterminer les caractéristiques électriques de la décharge étudiée.

Le modèle développé dans ce chapitre va être appliqué au chapitre trois pour une décharge radiofréquence dans l'argon dans le cas symétrique et asymétrique. Les résultats obtenus seront comparés aux résultats expérimentaux existent dans la littérature afin de valider le modèle.

CHAPITRE : III

DECHARGE RADIOFREQUENCE DANS L'ARGON

III.1 Introduction

Les décharges radiofréquence couplées capacitivement sont très utilisées comme source d'espèces neutres réactives (atomes, radicaux, molécules) et des espèces ionisées (positives, négatives) à des températures relativement basses. L'efficacité des plasmas de décharge radiofréquence basse pression (la pression est comprise entre 10^{-1} Pa et 10^{3} Pa) utilisés dans des procédés de traitement et/ou de modification de l'état de surface de matériaux et l'industrie de dépôt des couches minces et la gravure. L'objectif permanent d'étudier ces décharges est l'amélioration de la compréhension de leurs comportements pour les contrôlées. Plusieurs travaux ont été faits dans le cadre de modélisation [Gr-2], [Tr-1], [Ni-1], [Be-1]. Dans la plupart des applications actuelles dans l'industrie, l'aspect physique et chimique joue souvent un rôle très important.

Dans ce chapitre, on fait une étude sur les caractéristiques électriques (variation spatio-temporelle du champ électrique, variation spatio-temporelle des densités : électroniques et ioniques, l'énergie moyenne de chaque espèce, etc.) de la décharge radiofréquence dans l'argon pur. Puis, on montre une comparaison entre les résultats de calcul obtenus par notre modèle décrit dans le chapitre.II et les résultats expérimentaux trouvés dans les littératures. On montre aussi l'influence des différents paramètres opératoires sur les caractéristiques électriques de la décharge radiofréquence.

Cette première étude est très utile, puisque l'argon est le gaz majoritaire utilisé dans plusieurs applications industrielles. Le modèle particulaire nécessite une bonne connaissance des sections efficaces de différentes particules chargées existantes dans le plasma, car ces sections efficaces représentent les données de basse du modèle particulaire. Comme les électrons sont les particules les plus énergétiques et donc ils sont à l'origine des principaux processus réactifs et par suite le maintien de la décharge, le bon choix de leurs sections efficaces est nécessaire. Ainsi, les ions positifs leurs énergies de bombardement de la cible est importante dans le cas de la pulvérisation.

Alors, au début de ce chapitre nous allons valider les sections efficaces utilisées, par une comparaison entre les coefficients de transport calculés et ceux de la mesure existent dans les littératures.

III.2 Données de Base dans l'argon

III.2.1 Sections efficaces de collision électron-neutre

Parmi toutes les sections efficaces existantes dans les littératures, Les données utilisées doit conduire à des coefficients de transport en accord avec les expériences.

Phelps [Ph-1] a donné les sections efficaces de différents processus collisionels dans l'argon. La section efficace de transfert de quantité de mouvement provient des mesures de Milloy *et al.* [Mi-1] pour des énergies inférieures à 4 eV. Pour des énergies supérieures à 30 eV, DeHeer *et al.* [De-2] donnent la section efficace d'excitation totale ; ces valeurs sont inférieures de 10% à celles proposées par Eggarter [Eg-1] et par Peterson et Allen [Pe-1]. Rapp et Englander-Golden [Ra-2] ont mesuré les sections efficaces totales d'ionisation pour tous les gaz rares, de leurs seuils d'ionisation jusqu'à 1 keV. Ils complètent leurs mesures avec celles trouvées par d'autres auteurs jusqu'à 20 keV. Carman [Ca-1] donne plusieurs expressions analytiques pour l'ionisation de Ar^+, Ar^{2+} et Ar^{3+} et pour l'excitation des ions d'argon. Peterson et Allen proposent une formule semi-empirique pour calculer la section efficace d'ionisation de l'argon [Pe-1].

Dans ce travail on a utilisé les sections efficaces de transfert de quantité de mouvement données par Hunter et Christophorou [Hu-1]. Et pour les collisions d'excitations on a utilisé les sections efficaces de Ferreira et Loueiro [Fe-1]. En fin pour les collisions ionisantes on a utilisé les sections efficaces de Rapp et Englander-Golden [Ra-2]. La figure III.1 illustre ces sections efficaces où elles sont subdivisées en deux intervalles énergétiques pour minimiser les collisions nulles.

Supposant qu'on a *m* intervalles d'énergies, chaque intervalle *j* correspond à une section efficace maximale σ_{mj} , quand un électron se déplace d'un intervalle *i* à un autre intervalle voisin *j* avant avoir une collision, le parcours libre sera changé mais sans tirage d'un autre nombre aléatoire, il peut être donné par la relation suivante :

$$S_{vol}^{j} = \left(1 - \frac{\sigma_{mi}}{\sigma_{mj}}\right) . S_{eff} + \frac{\sigma_{mi}}{\sigma_{mj}} S_{vol}^{i} \qquad \text{(III-1)}$$

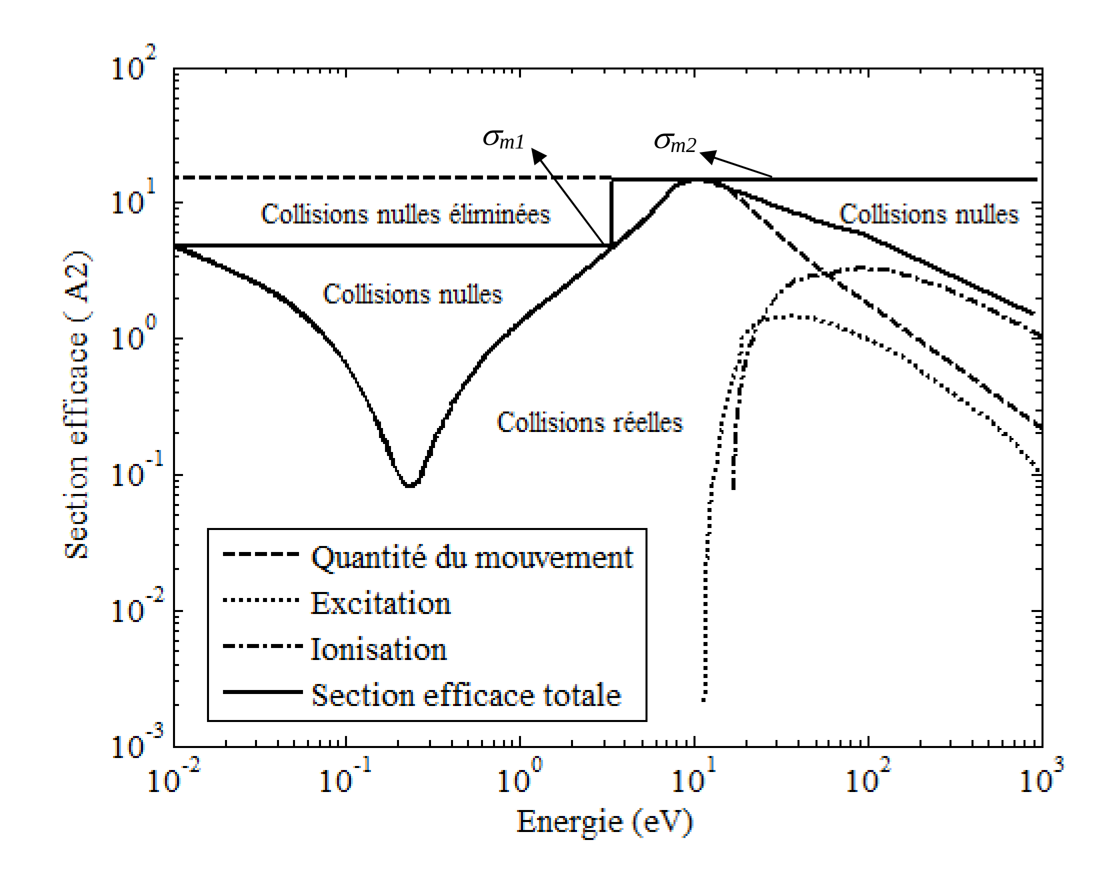


Fig.III.1 : Sections efficaces de collision subdivisées en deux intervalles d'énergies, intervalle 1 pour les énergies inférieurs ou égales à 3.5 eV et l'intervalle 2 pour les énergies supérieurs à 3.5 eV, σ_{m1} est la section efficace maximale correspond à l'intervalle 1, σ_{m2} la section efficace maximale correspond à l'intervalle 2.

S_{eff} : est le parcours effectué quand l'électron est situé à la lisière des intervalles *i* et *j*

III.2.2 Paramètres de transport et validation des sections efficaces électron-neutre

A partir des sections efficaces utilisées dans ce travail de recherche, on a montré quelques paramètres de transport (mobilité, vitesse de dérive et le coefficient d'ionisation -1er coefficient de Townsend-), puis, on a les comparés aux mesures expérimentales. La figure III.2 montre le coefficient d'ionisation réduit (α/p) calculé par la méthode de Monte Carlo pour un champ réduit compris entre 5 $V.cm^{-1}.Torr^{-1}$ et 1000 $V.cm^{-1}.Torr^{-1}$, ce coefficient a une grande importance sur la détermination des caractéristiques de la décharge, il est généralement fonction du champ réduit E/p.

Sur la Figure III.3. On montre une comparaison entre le coefficient d'ionisation calculé à partir de nos sections efficaces et les mesures expérimentales de Kruithof [Kr-1]. On peut dire que l'accord entre les deux est excellent pour un champ réduit compris entre 30 $V.cm^{-1}.Torr^{-1}$ et 600 $V.cm^{-1}.Torr^{-1}$.

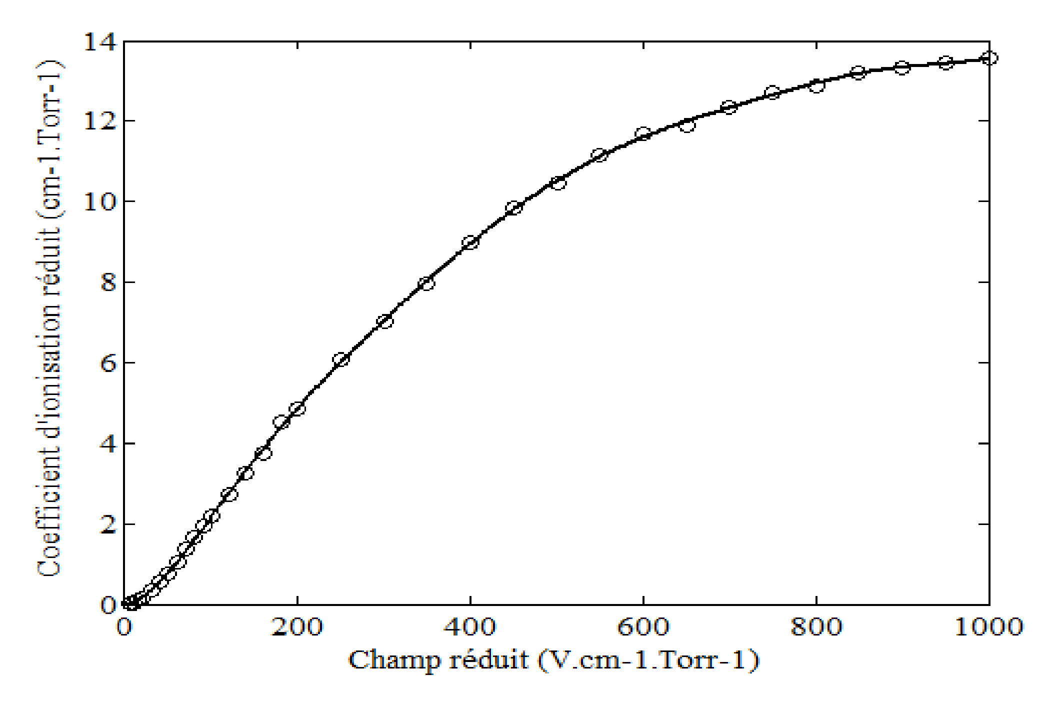


Fig. III.2 : Coefficient d'ionisation réduit de l'argon en fonction du champ réduit

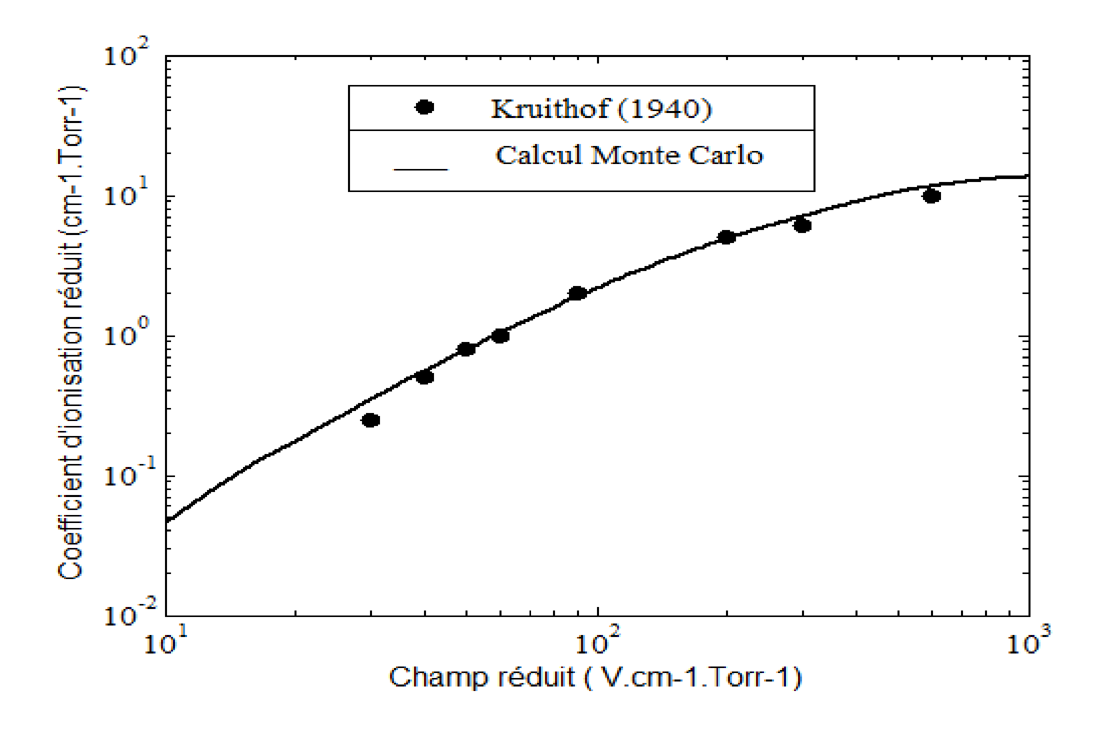


Fig. III.3 : Comparaison du coefficient d'ionisation réduit calculé aux mesures expérimentales

La figue III.4 montre l'évolution de la mobilité électronique dans le gaz parent, elle est très importante pour des champs réduits faibles, elle est correspond à la limite de la mobilité en température quand le champ réduit est nul. On montre aussi à partir de la figure III.5 l'évolution de la vitesse de dérive des électrons.

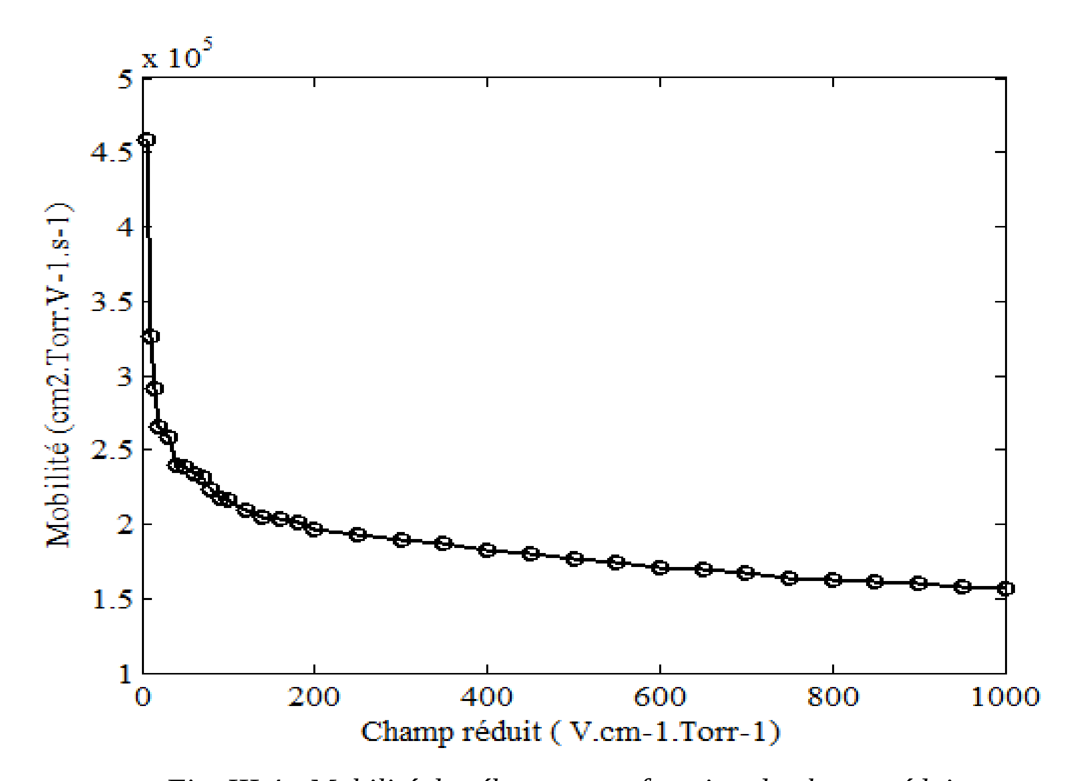


Fig. III.4 : Mobilité des électrons en fonction du champ réduit

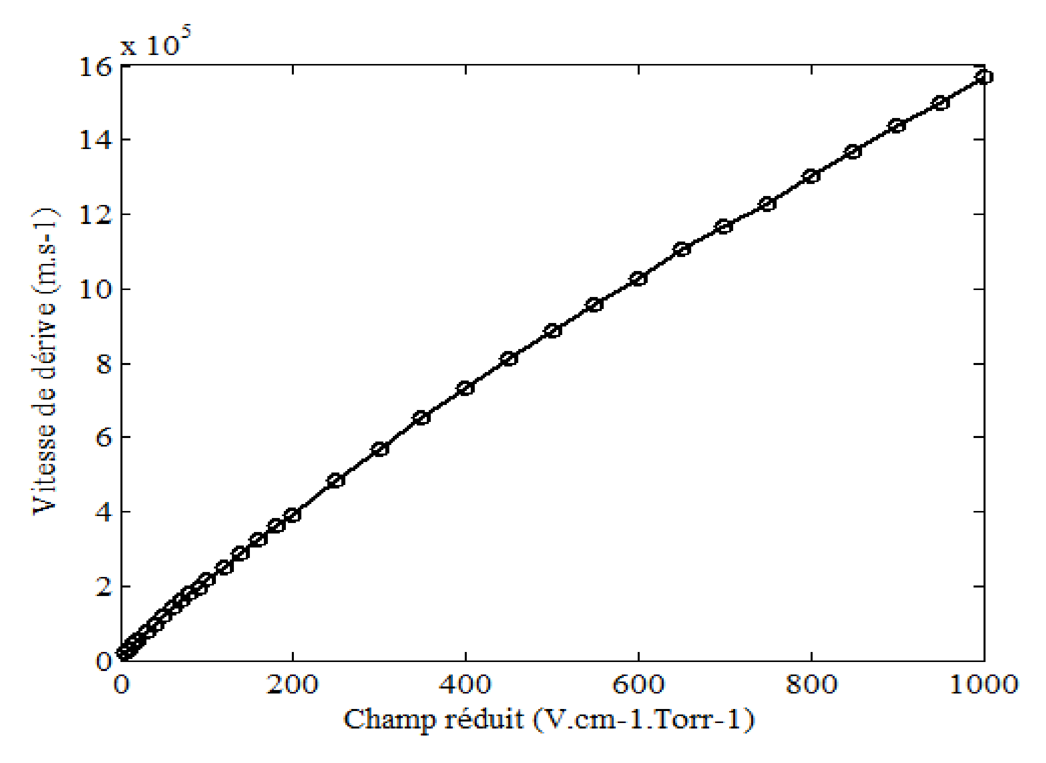


Fig. III.5 : Vitesse de dérive des électrons en fonction du champ réduit

III.2.3 Sections efficaces de collision ion-neutre

III.2.3.1 Transfert de charge

Le transfert de charge est le processus collisionnel le plus important pour le transport dans les gaines. Il est très important pour la détermination des énergies ioniques qui vont bombarder la cathode. Ce processus se produit quand un ion passe à proximité d’un neutre du gaz, il lui arrache un électron. Le nouvel ion formé se trouve initialement à l’énergie du neutre, alors que l’ancien ion, maintenant neutralisé, continue sa course sans avoir perdu son énergie. Ce neutre énergétique créé sera appelé neutre rapide. Si l’on prend l’exemple de l’argon, la réaction correspondante peut être écrite comme suit :

$$Ar^{+} + Ar_{0} \text{ -------> } Ar_{f} + Ar^{+}$$

L’indice 0 rattachant le neutre au groupe des neutres du bain thermique, et l’indice f (f : *fast* en anglais, rapide). Les neutres rapides créés en grand nombre dans la gaine vont être à l’origine du chauffage du gaz.

Comme la collision va être caractérisée par la valeur de sa section efficace associée. Une étude bibliographique a été menée sur les données calculées ou mesurées, existantes dans la littérature. Plusieurs auteurs ont travaillé sur les gaz rares et un grand nombre de données est accessible, notamment pour l’argon. Sur la Figure III.6, sont représentées les sections efficaces qu’on a trouvées pour le transfert de charge dans l’argon fonction de l’énergie de l’ion incident Ar^{+} dans le référentiel du laboratoire.

Cramer [Cr-1] a mesuré la section efficace totale de transfert de charge pour des énergies ioniques incidentes comprises entre 4 et 400 eV. Sakabe et Izawa [Sa-3] ont travaillé sur le transfert de charge. Ils ont défini sa section efficace comme étant uniquement fonction du potentiel d’ionisation du gaz, et ont donné une expression analytique applicable à tous les gaz.

$$\sigma_{tc}(v_r) = \left(A - B \ \log_{10}(v_r)\right)\left(\frac{I}{I_0}\right)^{-1.5} \qquad \text{(III-2)}$$

Où I_0 est le potentiel d'ionisation de l'hydrogène (13.6 eV) et les coefficients A et B sont valables pour tous les gaz (A = 1.81 10^{-14}, B = 2.12 10^{-15}), la variable unique étant le potentiel d'ionisation I (d'argon 15.76 eV).

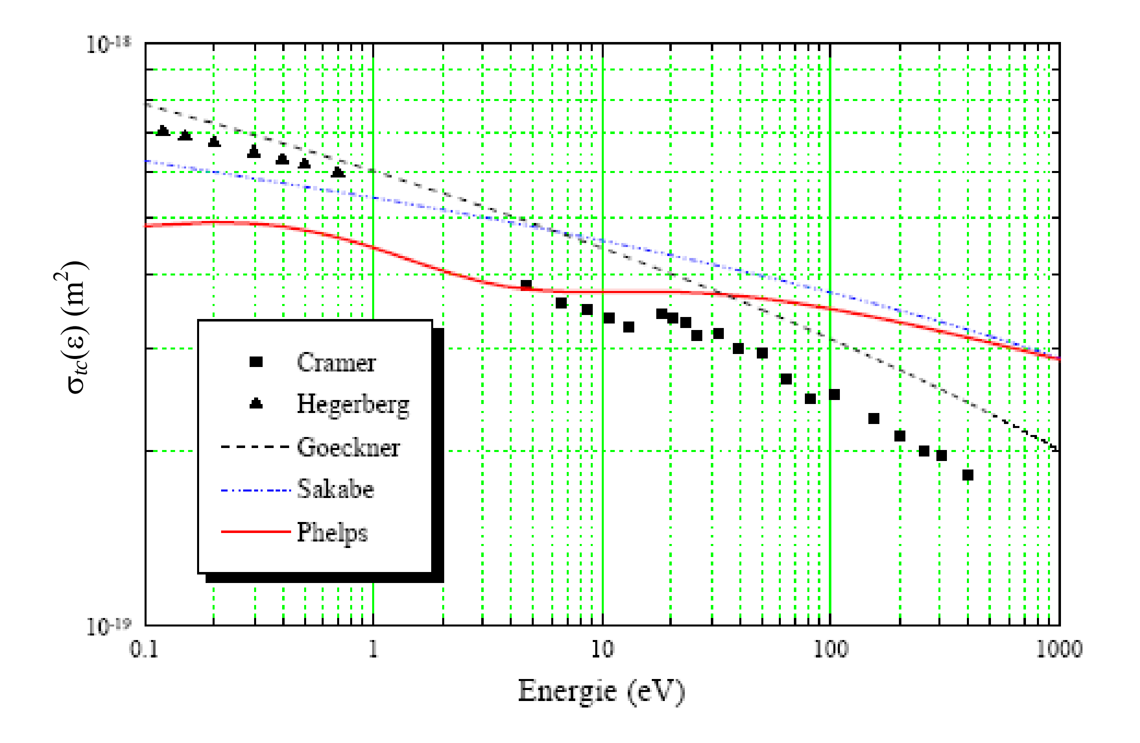


Fig. III-6 : Sections efficaces de transfert de charge en fonction de l'énergie de l'ion incident dans le référentiel du laboratoire.

Goeckner *et al.* [Go-2] utilisent une expression analytique donnée par Popescu Iovitsu et Ionescu-Pallas [Po-1], dont la forme est :

$$\sigma_{tc}(v_r) = (A + B \ln(v_r))^2$$

Où V_r est la vitesse relative en m.s^{-1} et A = 1.51 10^{-9} et B = -9.53 10^{-11} et la section efficace en m^2. Hegerberg et al. [He-3] ont calculé la section efficace de transfert de charge pour Ne^+ dans Ne et Ar^+ dans Ar, ceci pour des énergies comprises entre 0.12 et 1.25 eV.

Finalement, Phelps [Ph-2] propose une approche différente pour déterminer les sections efficaces de transfert de charge et de collision élastique, à partir de l'interprétation de la section efficace différentielle.

La Figure III.7 représente la section efficace de transfert de la charge utilisée, elle est calculée dans le cadre de cette thèse.

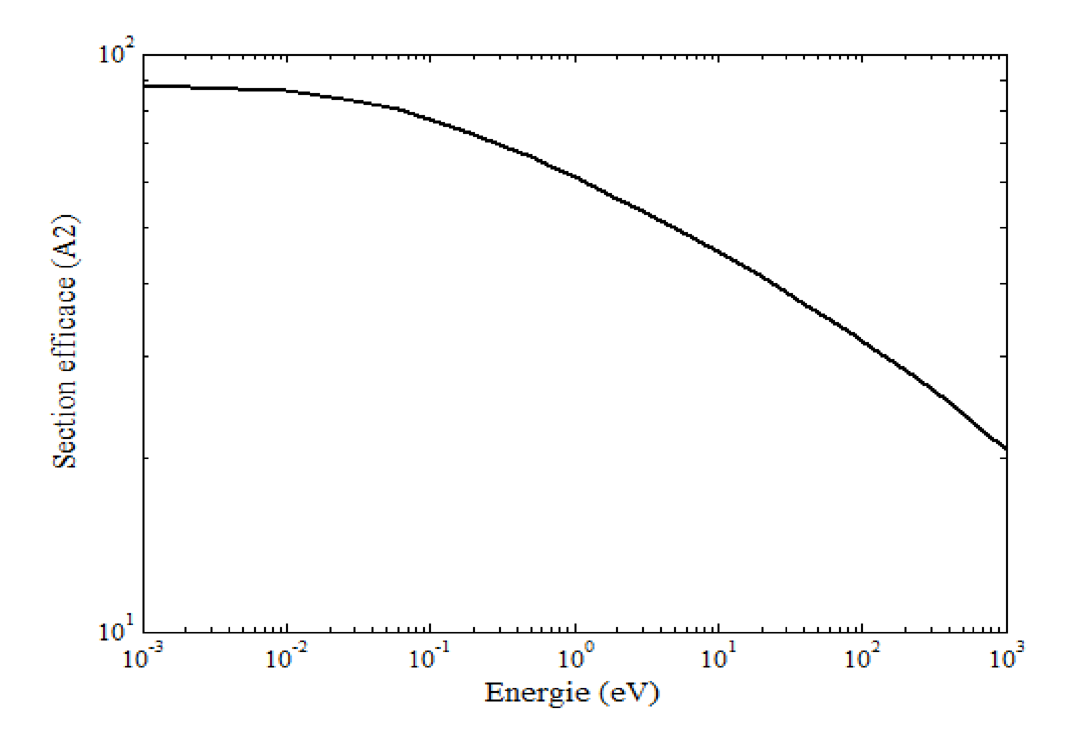


Fig. III-7 : Section efficace de transfert de charge (Ar^+/Ar)

III.2.3.2 Collision élastique

Le deuxième processus jouant un rôle important dans le transport des ions est la collision élastique. Lors de cette collision, la particule incidente perd une fraction de son énergie, fraction qui est directement reliée à l'angle de déviation consécutif à la collision.

Nous nous limiterons, comme pour le transfert de charge, à passer en revue quelques unes des nombreuses données sur la section efficace de collision élastique dans l'argon. Ces données sont représentées sur la Figure III-8.

Cramer [Cr-1] a mesuré la section efficace totale de transfert de charge σ_{tc}, ainsi que la section efficace totale de collision, σ_{tot}. A partir des ces mesures, il a déduit la section efficace totale de collision élastique $\sigma_{el} = \sigma_{tot} - \sigma_{tc}$. Goeckner *et al.* [Go-2] proposent une solution analytique issue de la paramétrisation des mesures de Cramer :

$$\sigma_{el}(v_r)=\left(A+B\ln(v_r)\right)^{f}$$

Où A = -2.27 1036, B = 3.08 1036, f = -0.52, V_r étant la vitesse relative en $m.s^{-1}$ dans le référentiel du laboratoire, et σ_{el} la section efficace en m^2.

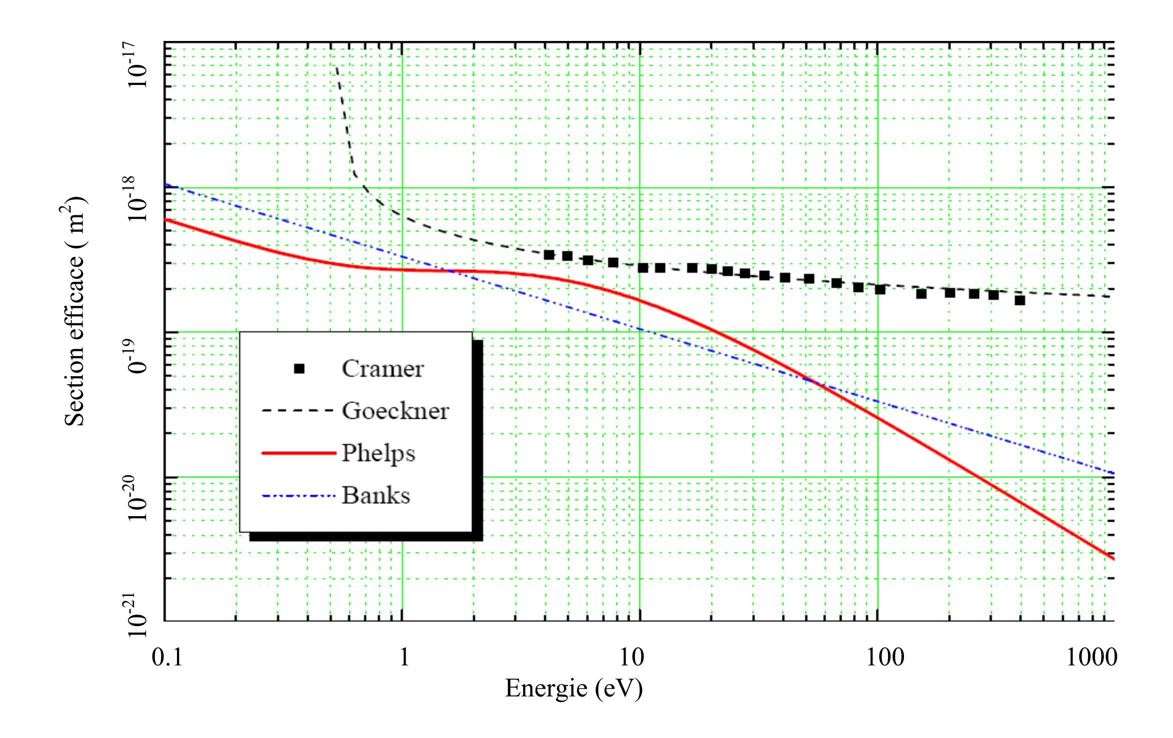


Fig. III-8 : Sections efficaces de collision élastique en fonction de l'énergie de l'ion incident dans le référentiel du laboratoire.

Phelps [Ph-2] propose quant à lui une expression correspondante non pas à la section efficace de collision élastique, mais à la section efficace totale de collision isotrope σ_{tot}. Son expression est :

$$\sigma_{el}=\frac{A}{\varepsilon^{0.5}(1+\varepsilon)}+\frac{B\varepsilon}{(1+\varepsilon/3)^{2}}$$

Où A et B sont des coefficients et ε est l'énergie de l'ion incident.

Certains auteurs se basent parfois sur le potentiel de polarisation pour déterminer la section efficace de collision élastique. Ainsi, Banks [Ba-1] propose une expression découlant du potentiel de polarisation :

$$\sigma_{el}(v_r) = \frac{2.11\pi}{v_r}\sqrt{\frac{e^2\ \alpha_B}{4\pi\varepsilon_0\mu_r}}$$

Où e est la charge élémentaire, ε_0 la permittivité du vide, α_B la polarisabilité électronique de l'atome en m^3 (1.6 10^{-30} m^3 pour l'argon), μ_r la masse réduite en kg, V_r la vitesse relative en $m.s^{-1}$ dans le référentiel de laboratoire, et σ_{el} la section efficace en m^2.

Dans cette thèse la section efficace de collision élastique de collision (Ar^+/Ar) calculée est illustrée sur la figure III.9, elle s'ajoutera au data d'argon.

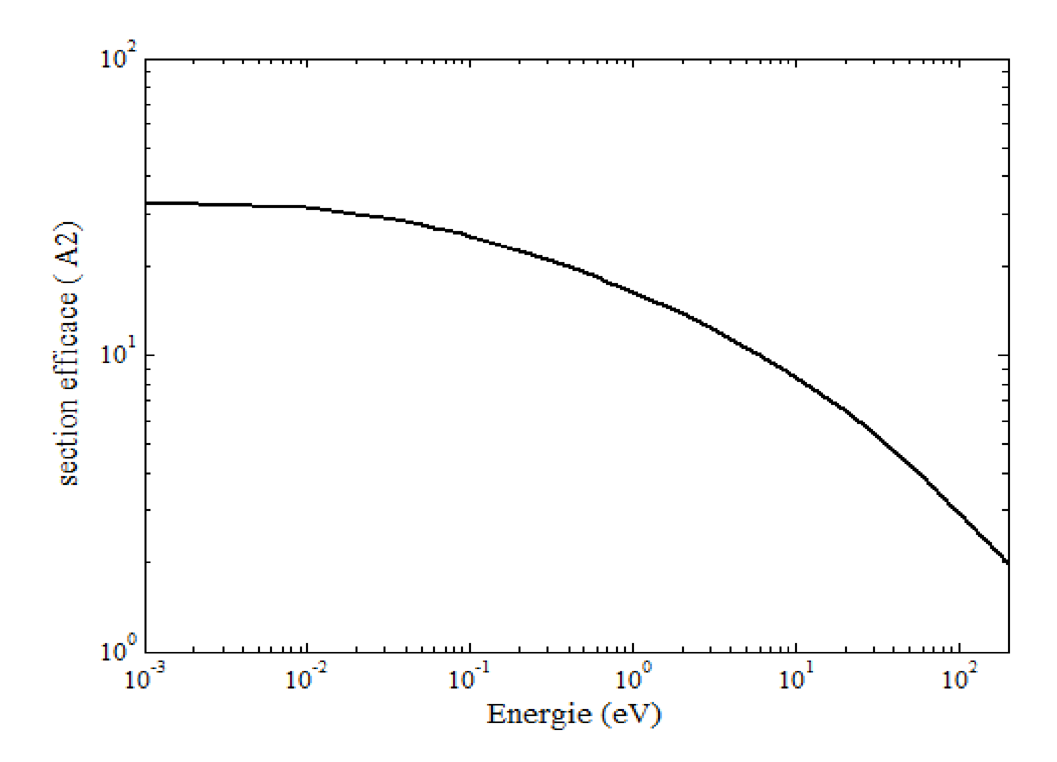


Fig. III-9 : Section efficace de collision élastique (Ar^+/Ar)

III.2.4 Paramètres de transport et validation des sections efficaces ion-neutre

Comme dans le cas des électrons on va valider les sections efficaces des collisions ion-neutre par une comparaison entre les paramètres de transport calculés et ceux expérimentés. Ellis *et al.* [El-1] ont présenté une compilation de données expérimentales sur les mobilités (fig.III.10) et les vitesses de dérive (fig.III.11) des ions dans un gaz neutre d'argon en fonction du champ réduit E/N. Nos calculs sont en excellent accord avec les données expérimentales, ce qui montre la validité de nos sections efficaces calculées.

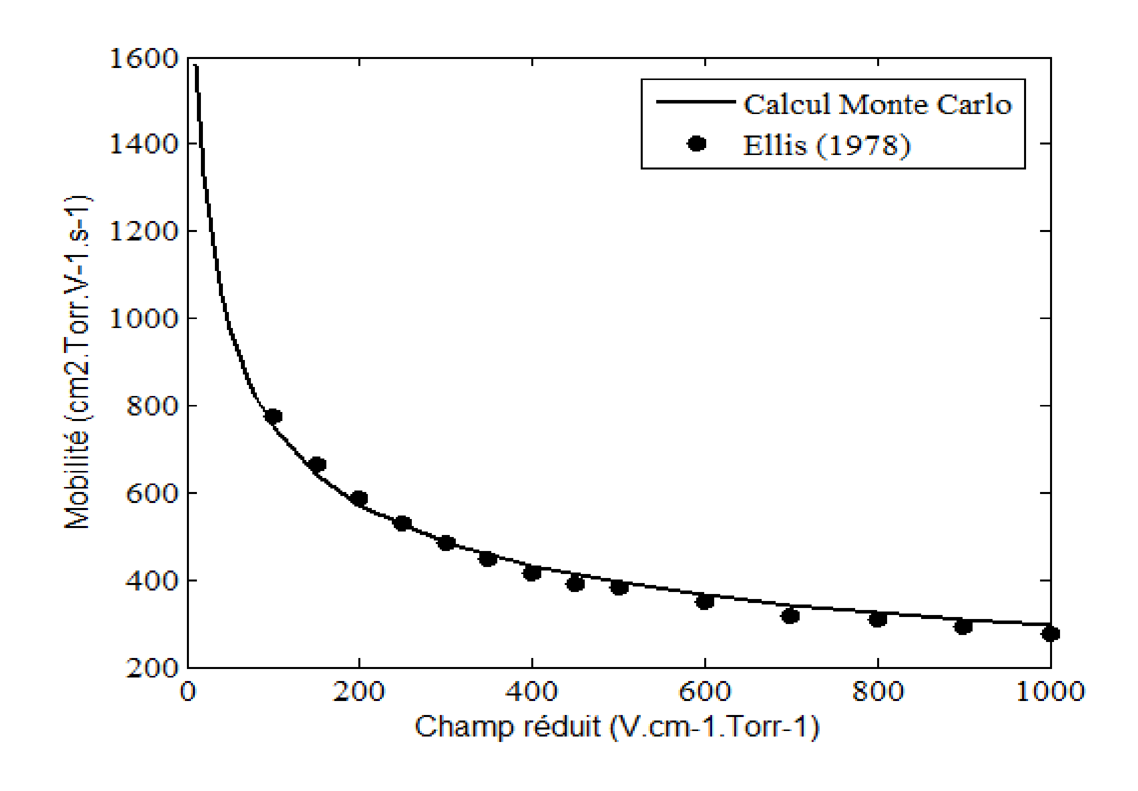


Fig. III.10 : Comparaison de la mobilité de l'ion (Ar^+) calculée aux mesures

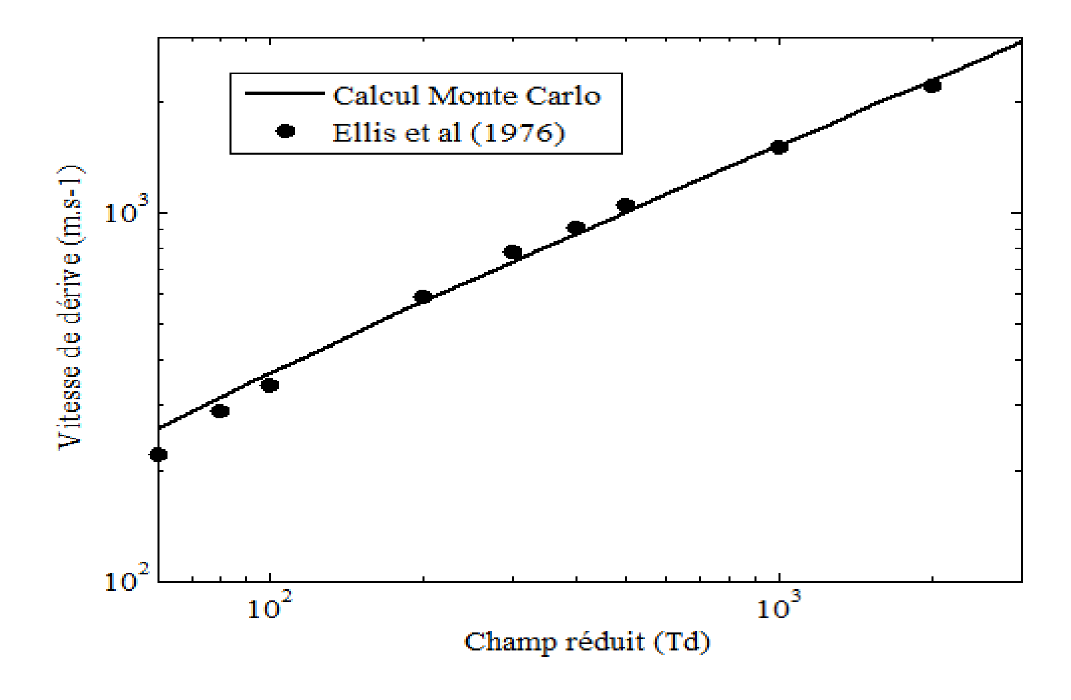


Fig. III.11 : Comparaison de la vitesse de dérive de l'ion (Ar^+) calculée aux mesures

III.3 Résultats pour une décharge radiofréquence symétrique

On a utilisé le modèle unidimensionnel pour simuler une décharge radiofréquence (RF) dans l'argon, cela dans un réacteur à deux plans parallèles où les surfaces des électrodes sont très importantes devant la distance entre eux. Les résultats sont obtenus pour une tension de 200V et un espace inter-électrode de 2.54 cm, une pression de 50 mTorr et une fréquence de 13.56 Mhz. Le coefficient d'émission électronique secondaire n'est pas pris en compte dans cette thèse.

III.3.1 Evolution temporelle des densités

A cause des fluctuations statistiques, le critère de convergence ne peut pas être défini par la comparaison entre les résultats obtenus par deux cycles RF successive. Alors, l'évolution temporelle des densités des espèces chargées au centre de la décharge constituent une bonne indication sur la convergence et la précision des résultats (fig.III.12).

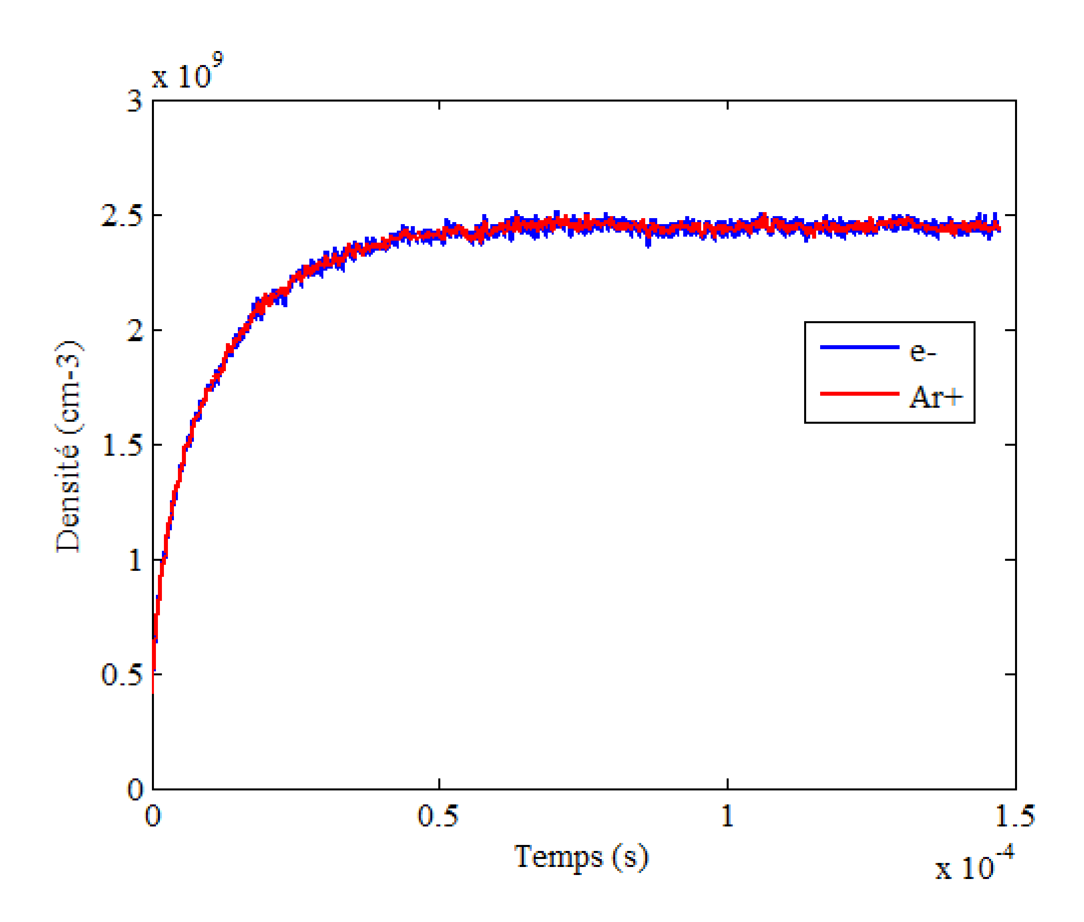


Fig. III-12 : Variation temporelles de la densité des ions Ar^+ et électrons

Commençant par une densité initiale où la neutralité électrique du plasma est respectée. Après un temps suffisant, la densité de chaque espèce sera stabilisée et les densités deviennent indépendantes du temps. La figure montre que le temps nécessaire pour atteindre le régime permanent est de l’ordre de 50 μs. elle montre également qu’au centre de la décharge le plasma est quasiment neutre où la densité de chaque espèce (ions Ar^+, électrons) est de l’ordre de 2.5×10^9 cm^{-3}.

III.3.2 Caractéristiques électriques de la décharge RF dans l’argon

Dans une décharge radiofréquence généralement la densité des ions ne présente aucune variation temporelle à cause de la faible mobilité ionique et la variation très rapide du champ électrique où les ions ne voient que le champ électrique effectif. La variation de la densité des ions positifs n’est fonction donc que de la position. A la lisière gaine-plasma la figure III.13 montre clairement le fort gradient de la densité, cela traduit le grand nombre des collisions ionisantes. Contrairement aux ions positifs, La Figure III.14 montre que les électrons suivent instantanément les variations du champ électrique à cause de leurs faibles inerties. Au début du cycle radiofréquence, les électrons sont attirés vers l’électrode de gauche (momentanément anode) en couvrant la charge des ions positifs (charge d’espace) ce qui diminue le champ électrique au voisinage de cette électrode, ce recouvrement de charge positive est l’origine de la contraction de la gaine. Après, les électrons sont repoussés vers le plasma et de nouveau la charge d’espace de la gaine revient positive. Cette apparition de la charge positive au voisinage de l’électrode, momentanément cathode, conduit à l’augmentation du champ électrique à cet endroit et par suite l’expansion de cette gaine. Donc, le mouvement des électrons en couvrant et découvrant la charge d’espace positive dans les gaines est la base de formation et de l’oscillation de ces gaines. La contraction et l’expansion des gaines sont elles mêmes la base du mouvement des électrons. Cette mutuelle, montre le fort couplage entre la cinétique des électrons et la variation spatio-temporelle du champ électrique (Fig.III.15). Ce dernier est fonction de la position et la phase de la tension radiofréquence appliquée, il est très faible dans le plasma à cause de la neutralité électrique et important dans les gaines où la densité de charge d’espace est positive. Aux électrodes, et parce que le champ électrique et le gradient du potentiel, il est très logique que le champ suit une variation sinusoïdale de même fréquence que la tension radiofréquence appliquée. Nous rappelons que la tension radiofréquence

$V_{rf}(t)$ est appliquée à l'électrode gauche (z = 0 cm), l'électrode droite est mise à la terre (z = 2.54 cm). La figure III.16 montre la variation spatio-temporelle du potentiel dans la décharge. Dans le plasma, ce potentiel est toujours supérieur à ceux des électrodes créant une barrière pour garder la stabilité et la neutralité du plasma. Ca valeur moyenne est proche de la moitié de la crête de la tension appliquée à cause de la symétrie de la décharge (tension d'auto-polarisation nulle).

L'énergie moyenne des électrons (Fig.III.17) est quasi constante dans le plasma avec une valeur minimale oscillante (au centre de la décharge). Dans la lisière gaine-plasma l'énergie moyenne des électrons est contrôlée par l'expansion et la contraction des gaines, autrement dis, que l'énergie moyenne des électrons est directement liée au champ électrique. L'énergie moyenne des ions durant le cycle radiofréquence est illustrée sur la Figure III.18. Cette énergie est très faible dans le plasma (correspond à l'énergie thermique à 300°K, au centre de la décharge elle vaut 0.038eV) à cause de la grande inertie des ions et du faible champ électrique. Dans les gaines, elle croit rapidement, en valeur et en forme elle est contrôlée par la pression et le champ électrique effectif vu par les ions.

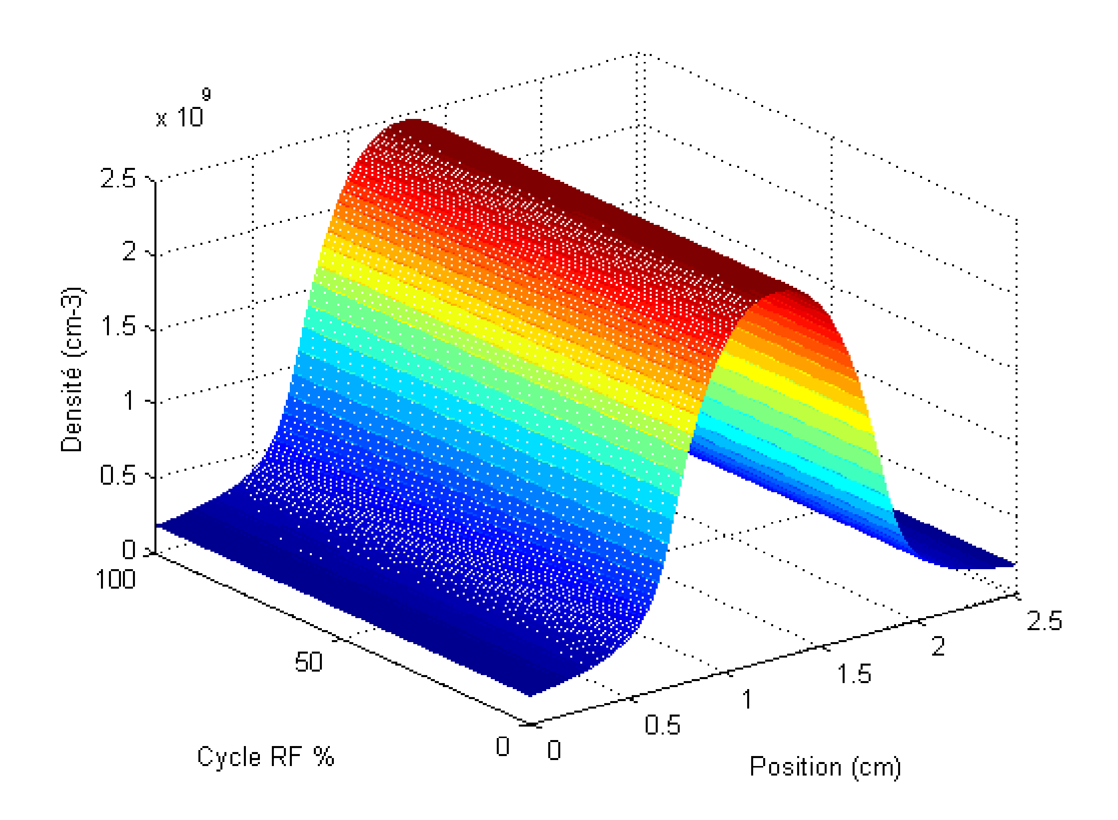


Fig. III-13 : Variation spatio-temporelles de la densité des ions Ar^+

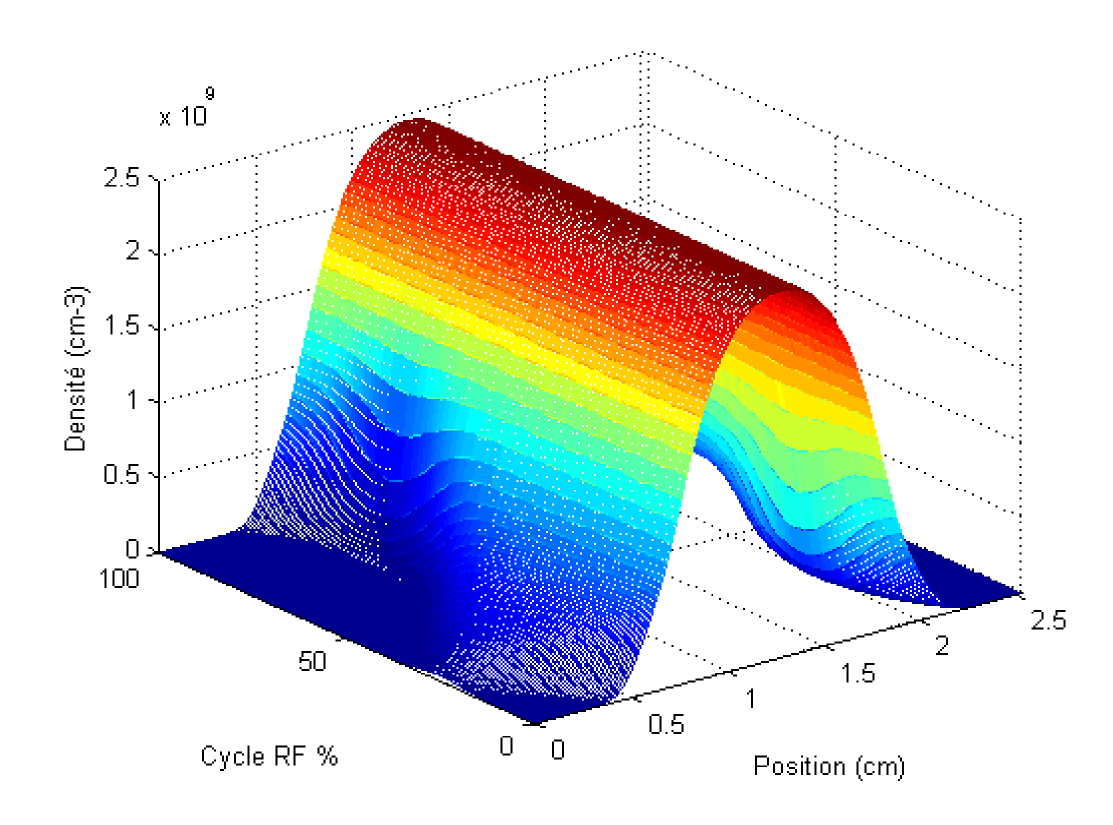


Fig. III-14 : Variation spatio-temporelles de la densité des électrons

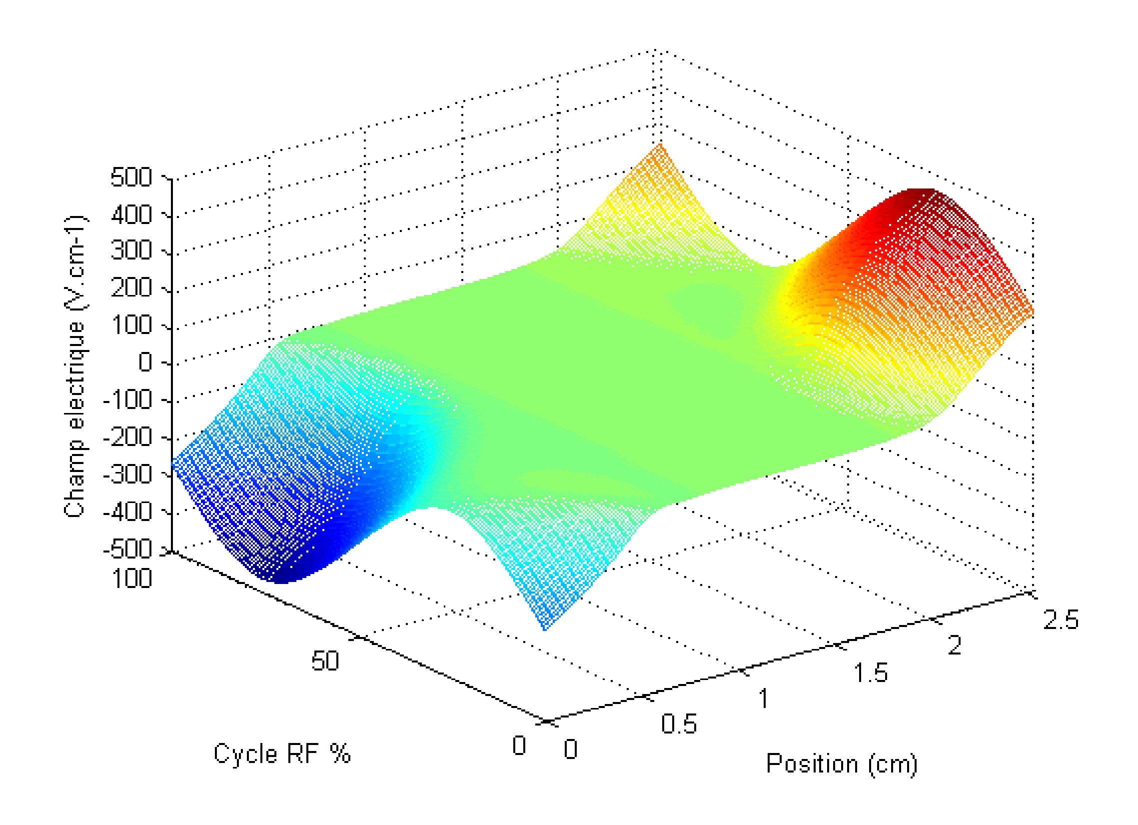


Fig. III-15 : Variation spatio-temporelles du champ électrique.

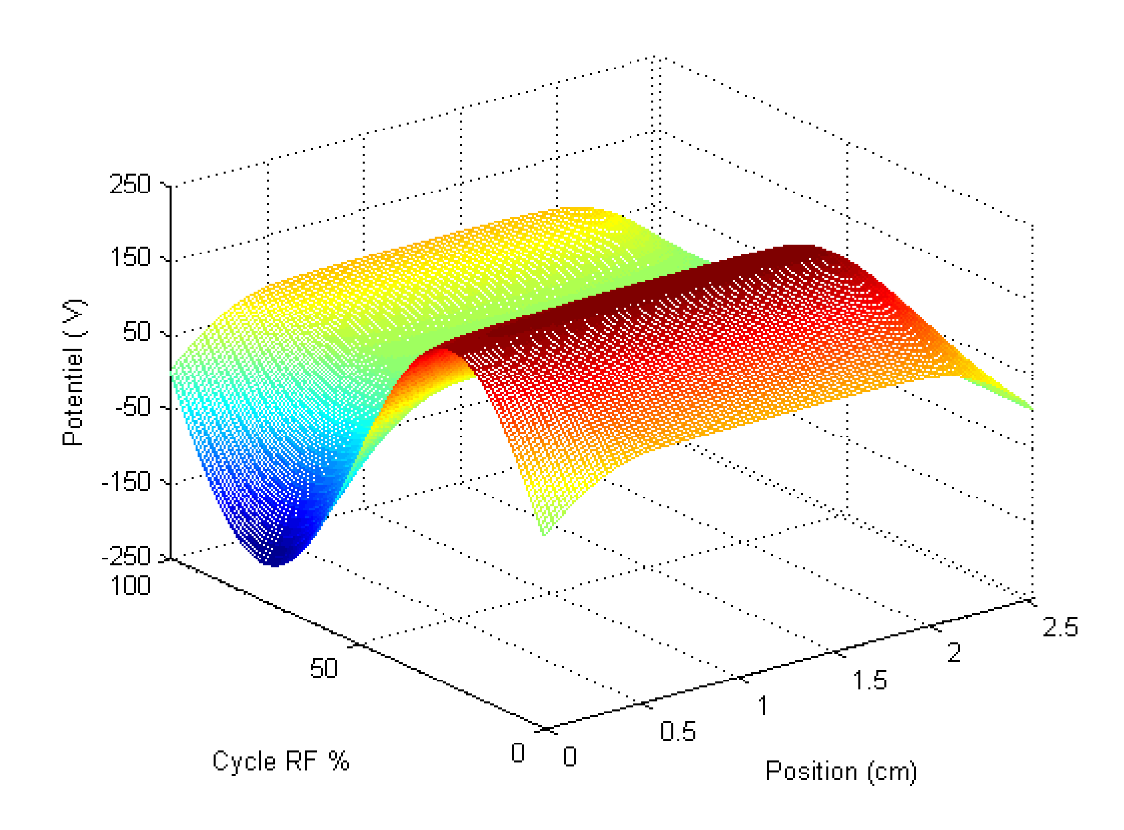


Fig. III-16 : Variation spatio-temporelles du potentiel plasma.

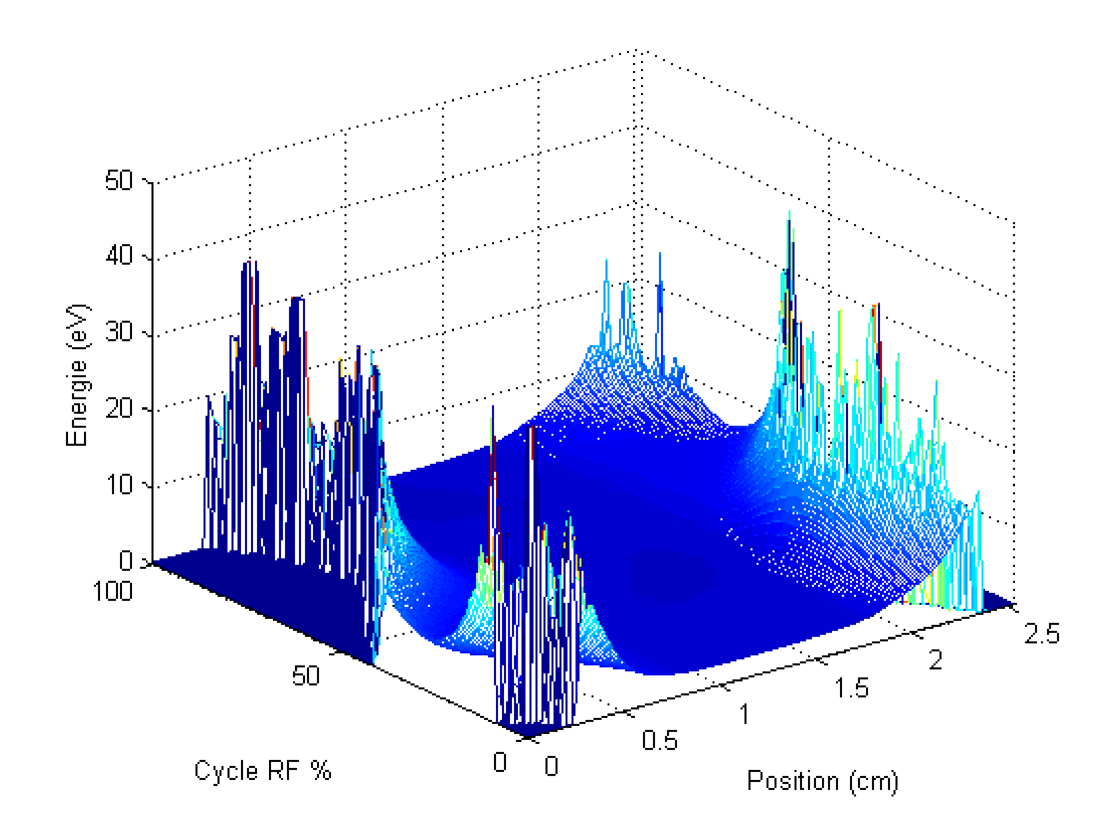


Fig. III-17 : Variation spatio-temporelles de l'énergie moyenne des électrons.

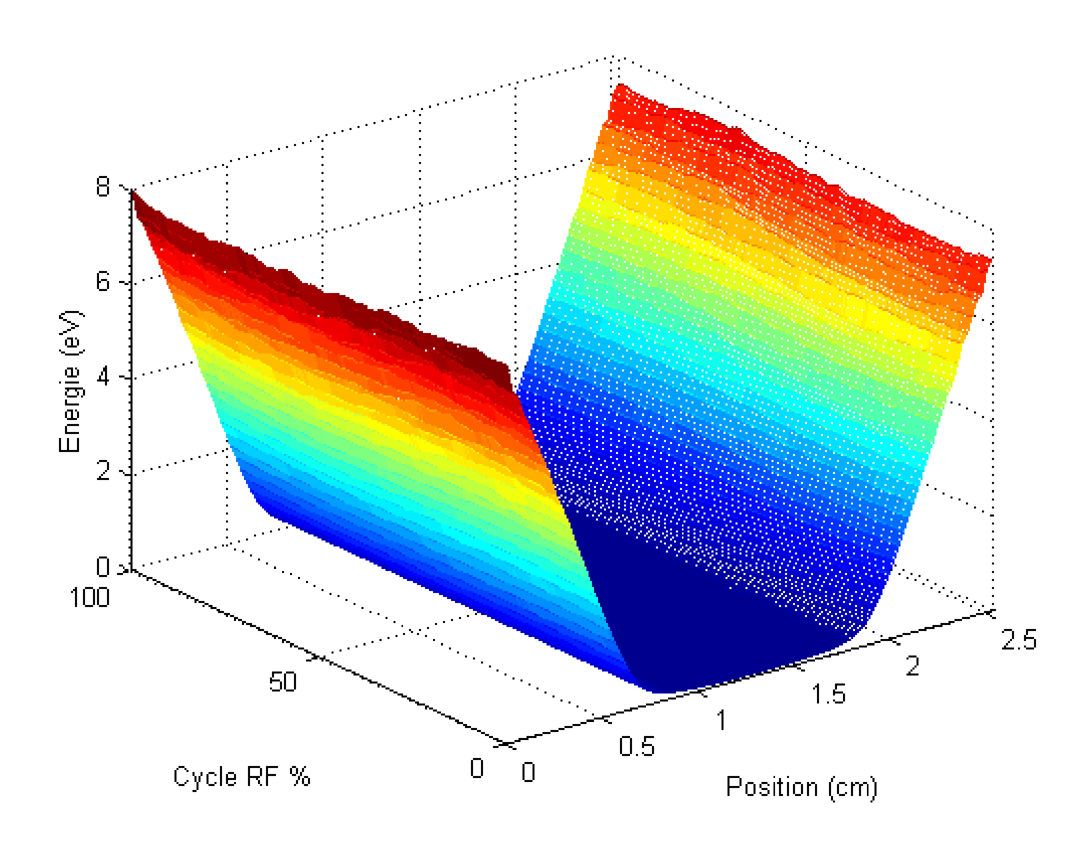


Fig. III-18 : Variation spatio-temporelles de l'énergie moyenne des ions (Ar^+).

III.3.3 effet de la pression

Pour savoir l'effet de la pression sur les caractéristiques de la décharge radiofréquence en garde tous les paramètres, en variant la pression du gaz. Les figures (III.19, III.20 et III.21) représentent les contours de la densité électronique. Ils sont obtenus respectivement pour les pressions suivantes : 50, 75 et 100 mTorr.

Avec l'augmentation de la pression, le nombre de collisions augmente, et par suite la densité des électrons augmente, la densité électronique à la mi-distance inter-électrodes en respectant l'ordre de pressions considérées est 2.4×10^9, $3.9\times10^9 cm^{-3}$ et 5×10^9 cm^{-3}. Par contre, les épaisseurs des gaines diminuent avec l'augmentation de la pression à cause de la diminution de la mobilité des ions positifs.

En conséquent, et pour ces raison, nous voyons l'augmentation du champ électrique dans les gaines (fig.III.22). Mais, malgré que le champ électrique devient plus en plus important dans les gaines avec l'augmentation de la pression. L'énergie moyenne des ions positifs reste diminue dans les gaines, à cause du grand nombre de collisions (gaine

collisionnelle), que soit les collisions de transfert de charge ou même les collisions élastiques. Un autre raison qui participe à la diminution de cette énergie est la diminution de l’épaisseur des gaines. Où les ions créant à partir de lisière gaine-plasma et traversant vers l’électrode ne gagnent pas suffisamment de l’énergie (fig.III-23). Avec l’augmentation de la pression, l’énergie moyenne des électrons présente une variation significative dans la lisière gaine-plasma, où les électrons poussés vers le plasma durant l’expansion de la gaine pénètrent beaucoup plus à faible pression qu’à des pressions élevées à cause de grand nombre de collisions. Au centre de la décharge, les électrons dans les décharges à des pressions élevés sont énergétiques un peu plus, car ils ont suffisamment du temps pour récupérer l’énergie que les électrons dans les décharges à faible pression (fig. III-24).

En fin de cette partie, on a montré une comparaison entre la fonction de distribution d’énergies électroniques (FDEE) calculée pour chaque pression et la distribution Maxwellienne correspondante (voir les figures III-25, III-26 et III-27). L’écart à la distribution Maxwellienne est diminué avec l’augmentation de la pression du gaz. Cet écart nous donne une idée sur la gamme de pression pour choisir un tel modèle (modèle particulaire ou modèle fluide).

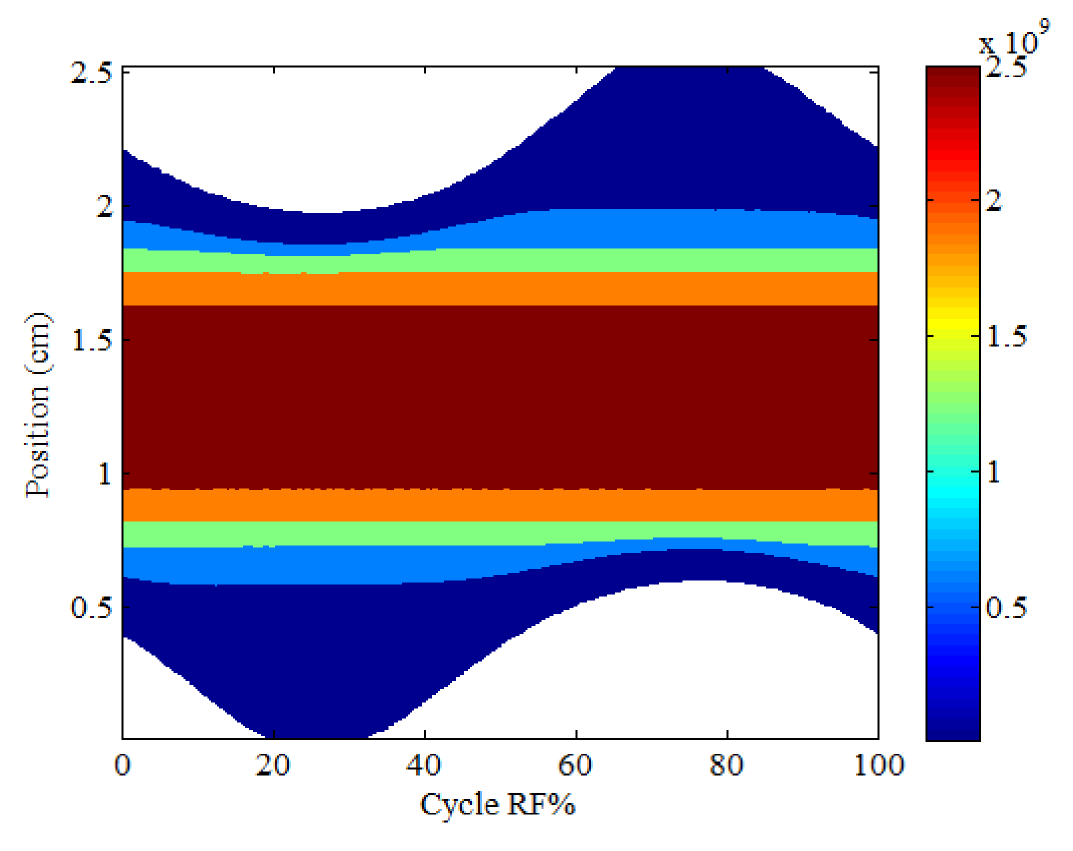


Fig. III-19 : Contours de la densité électronique pour une pression de 50 mTorr

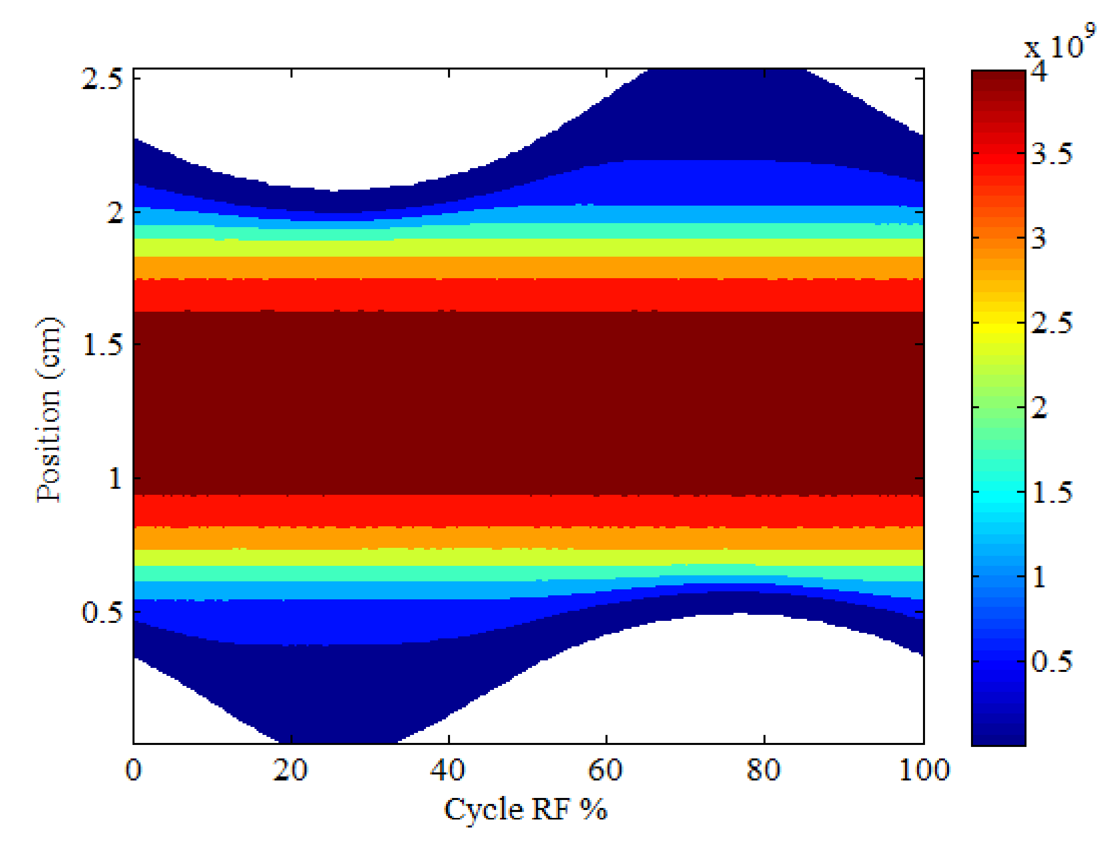


Fig. III-20 : Contours de la densité électronique pour une pression de 75 mTorr

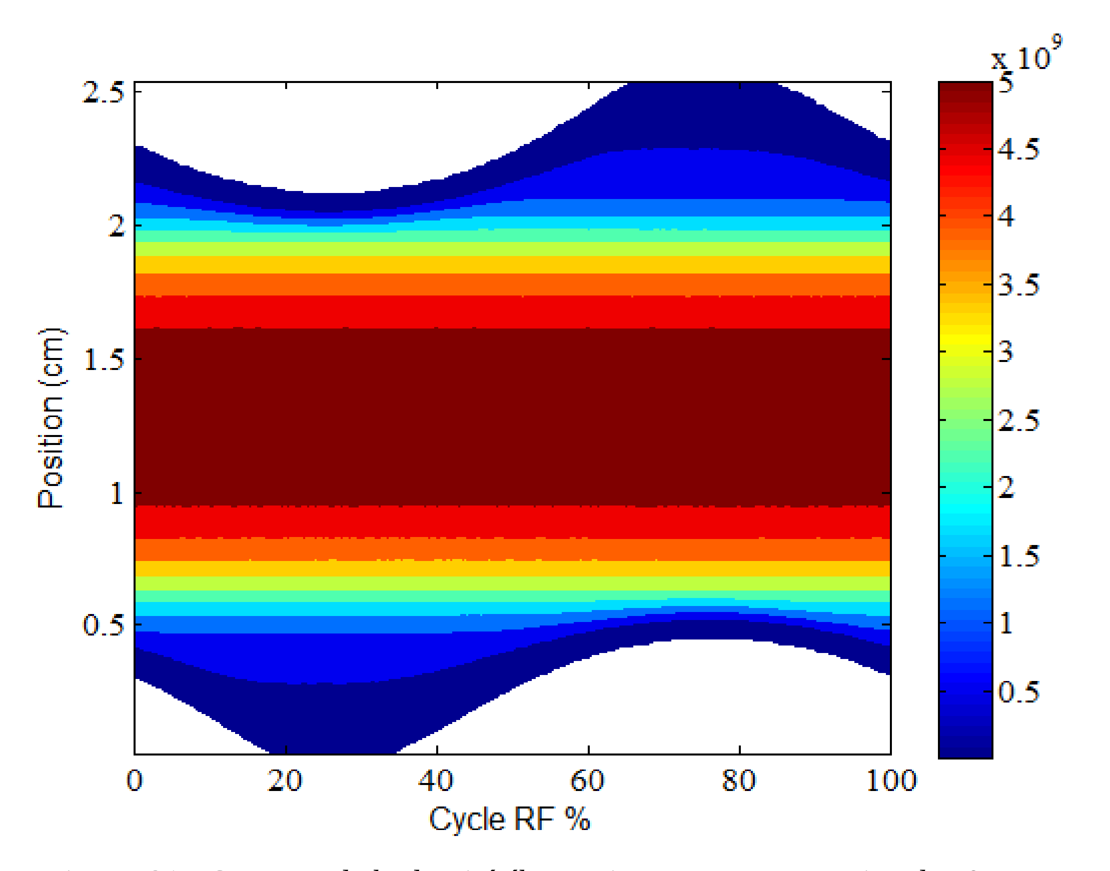


Fig. III-21 : Contours de la densité électronique pour une pression de 50 mTorr

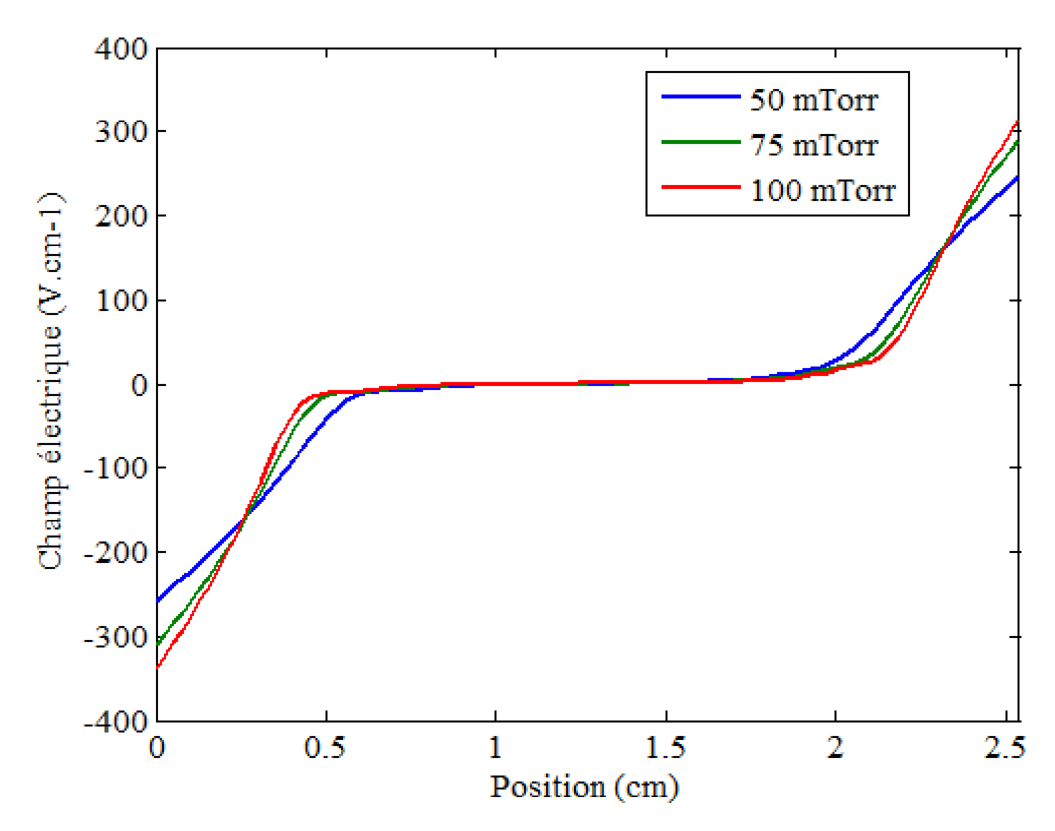


Fig. III-22 : Champ électrique calculé au début de cycle RF

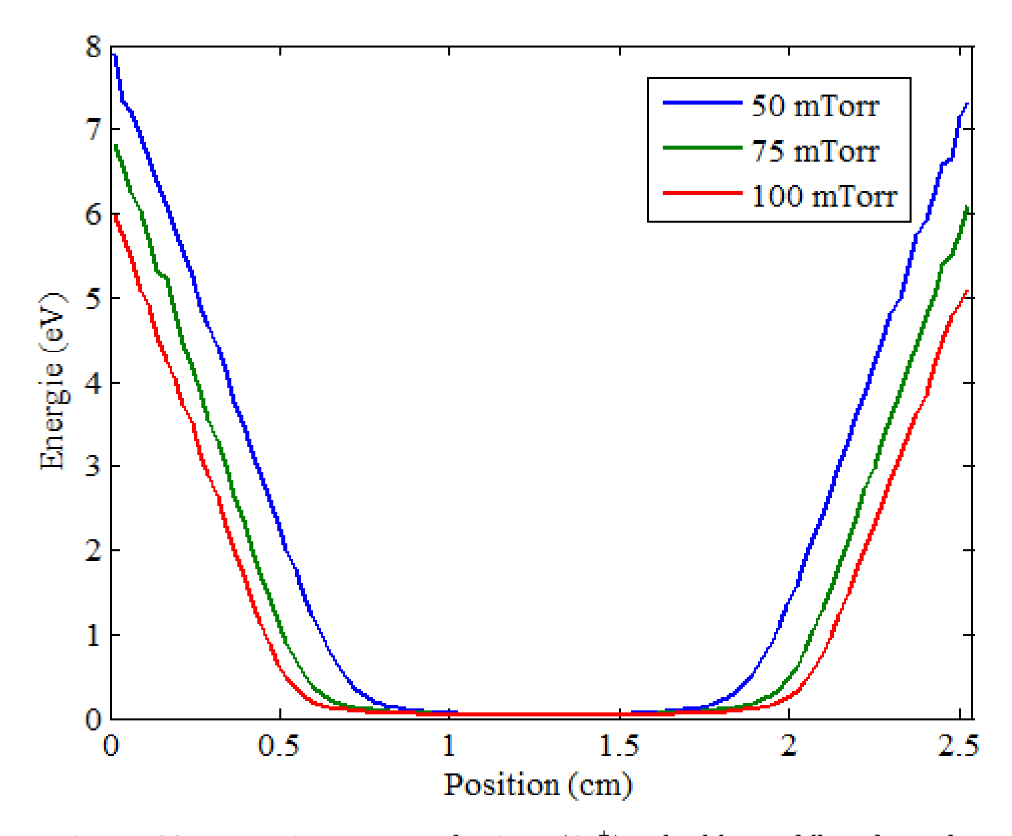


Fig. III-23 : Energie moyenne des ions (Ar^+) calculée au début de cycle RF

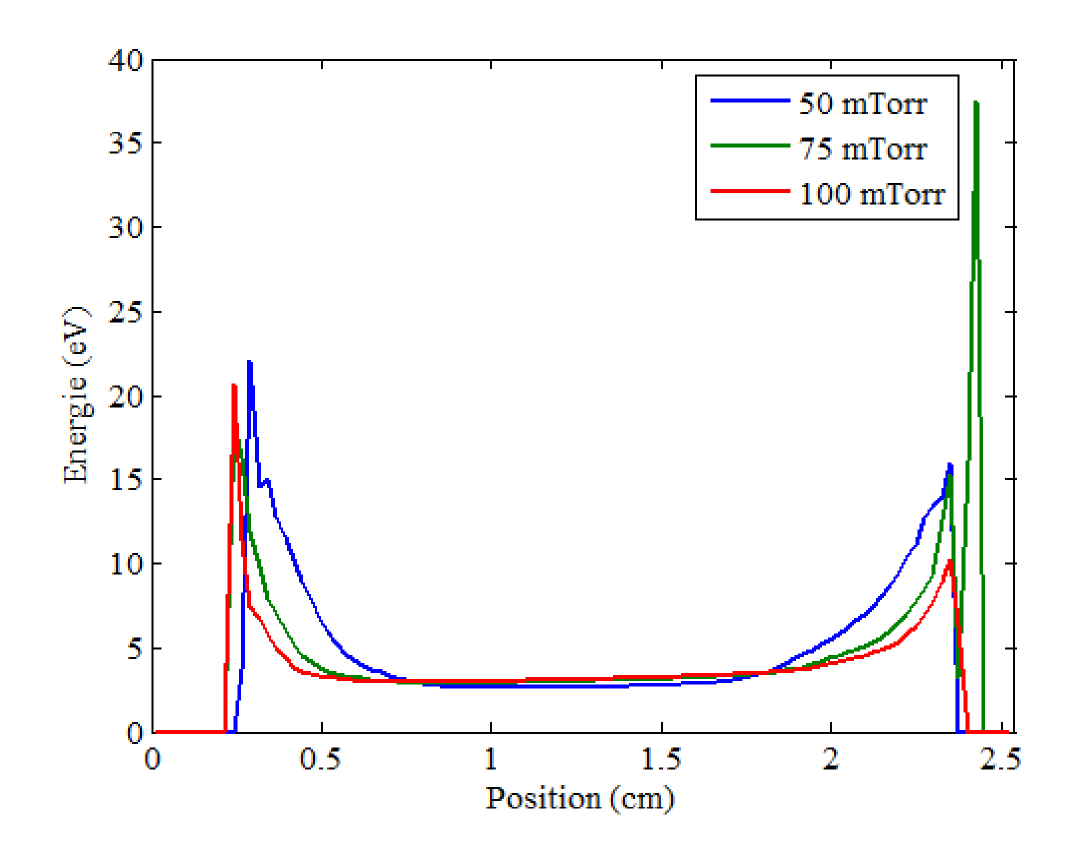


Fig. III-24 : Energie moyenne calculée des électrons au début du cycle RF

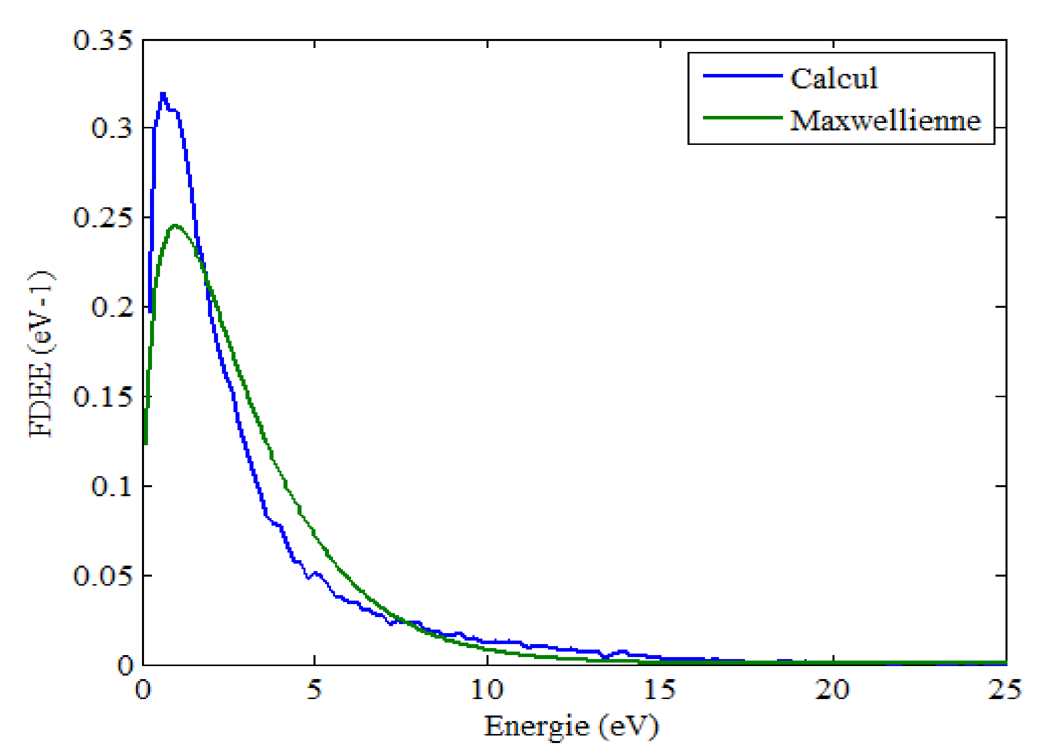


Fig. III-25 : Comparaison de la fonction de distribution d'énergies électronique (FDEE) calculée à la distribution Maxwellienne pour une pression de 50 mTorr.

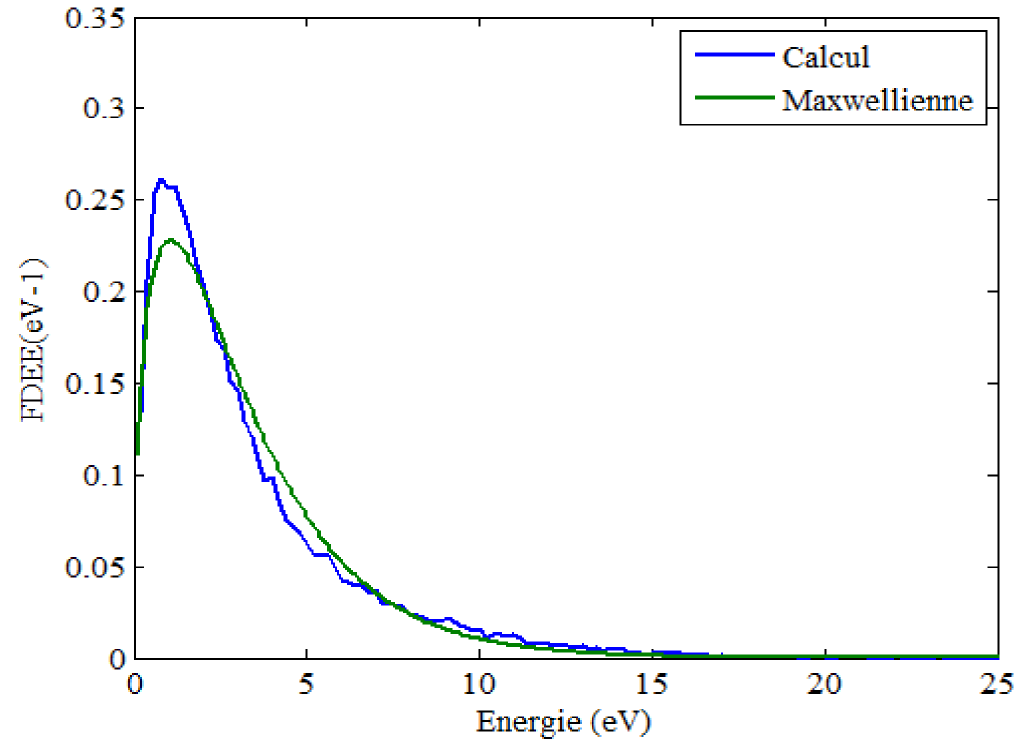


Fig. III-26 : Comparaison de la fonction de distribution d'énergies électronique (FDEE) calculée à la distribution Maxwellienne pour une pression de 75 mTorr

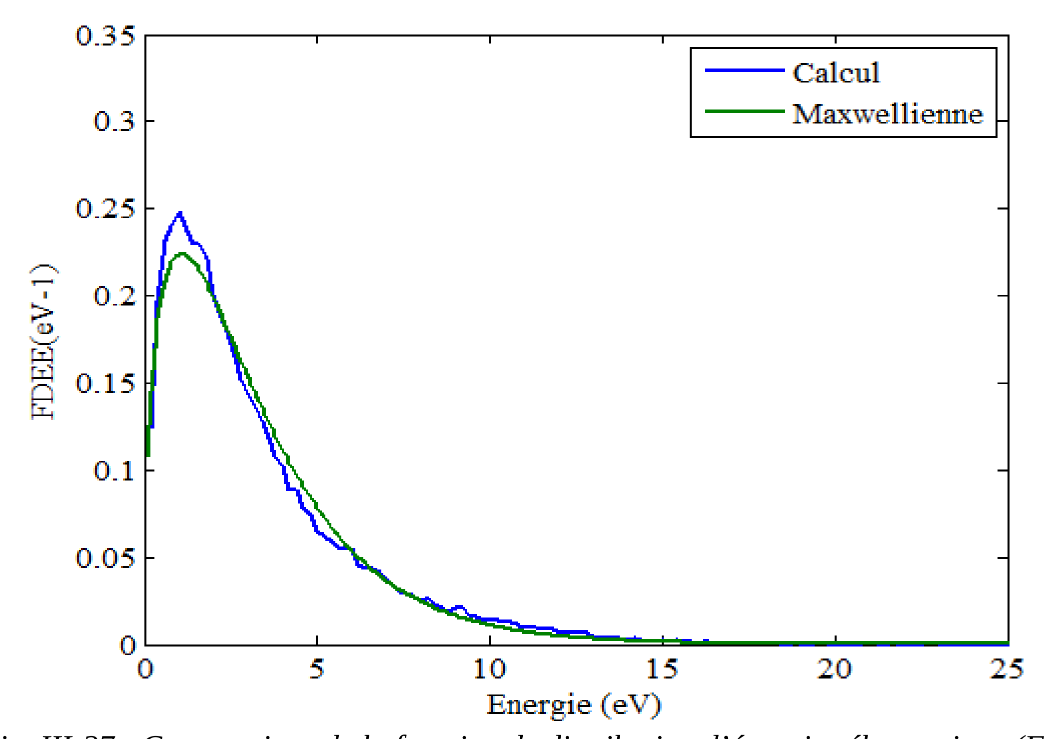


Fig. III-27 : Comparaison de la fonction de distribution d'énergies électronique (FDEE) calculée à la distribution Maxwellienne pour une pression de 100 mTorr

III.4 Résultats pour une décharge radiofréquence asymétrique

Pour une décharge asymétrique le modèle unidimensionnel n’est plus valable, il est nécessaire de passer au modèle multidimensionnel (2D3V) ou (3D3V) selon la géométrie du réacteur plasma. Dans ce qui suit, on a utilisé un modèle multidimensionnel pour la simulation des particules chargées pour une géométrie cylindrique, cette géométrie a permis de résoudre l’équation de poisson en (2D) en tenant la densité moyenne des particule chargées pour les points qui ont la même distance (r) à l’axe de symétrie de révolution (voir la figure II-8, chapitre II). La Figure.III-28 représente le schéma simplifie du domaine à simuler.

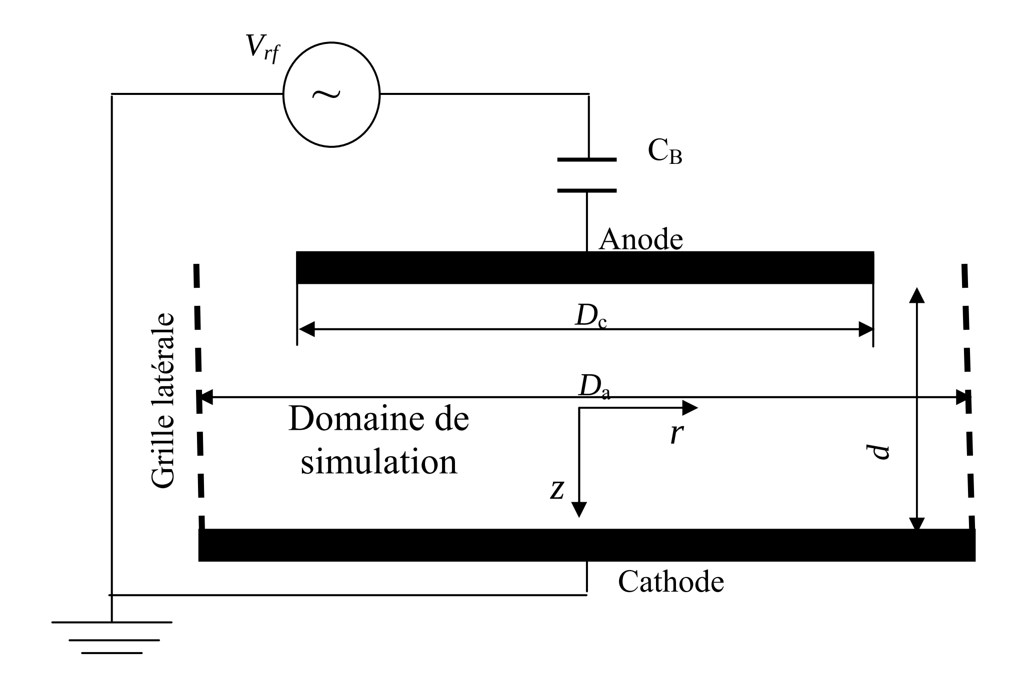


Fig. III-28 : Schéma simplifie du domaine à simuler.

C_B est une capacité de blocage avec une impédance négligeable pour la fréquence d’excitation utilisée C_B=100pF. Le couplage avec le circuit extérieur est réalisé à travers cette capacité.

III.4.1 Caractéristiques électriques

Les résultats sont obtenus pour une décharge d’argon dans un réacteur cylindrique schématisé sur la Figure.III-28, avec D_a=12 cm, D_c=10 cm et d =2.25 cm, sous une tension

radiofréquence de 200 V de crête (400V crête à crête), 13.56 Mhz de fréquence et une pression du gaz d'argon de 50 mtorr.

La simulation est démarrée par un potentiel d'auto polarisation V_{dc} nul, en régime permanent le potentiel dans le domaine de simulation reste positif, à l'exception au voisinage de la cathode où il décroît rapidement à la valeur du potentiel d'auto polarisation V_{dc} apparaît juste à la cathode (fig. III-29). La densité des électrons est représentée dans la figure III-30 et celle des ions est illustrée dans la figure III-31. Ces densités sont quasiment égales dans le plasma (ce qui montre la neutralité de ce milieu) avec une valeur un peu importante à coté de la grille latérale, cela causé par une double expansion et contraction des gaines radiale et axiale, à cause de la variation temporelle de la tension de la source radiofréquence. L'écart entre la densité des électrons et la densité des ions apparaît dans les gaines. Il est très important dans la région cathodique que dans la région anodique, et cela due au potentiel d'auto polarisation. La densité maximale est 3.5×10^9, ce maximum est situé environ à la mi-distance entre les électrodes.

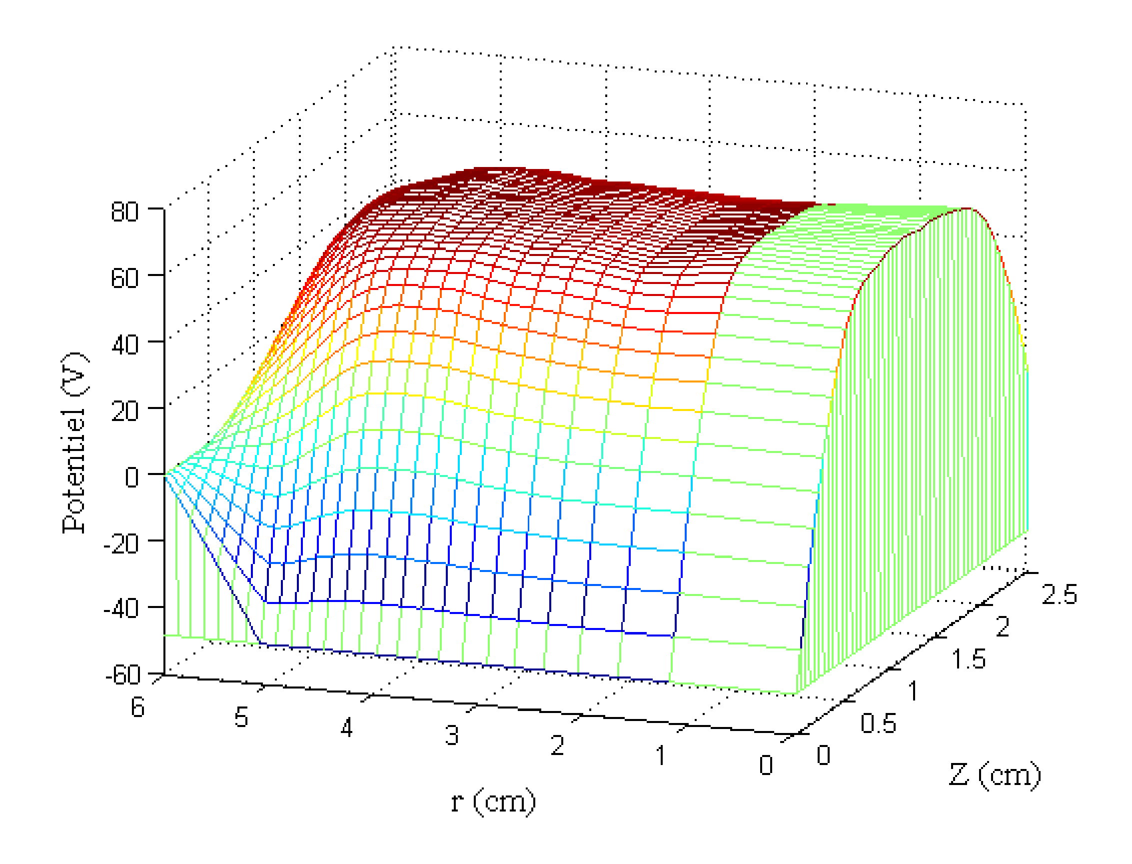


Fig. III-29 : Variation spatiale du potentiel plasma à l'instant t=0%T

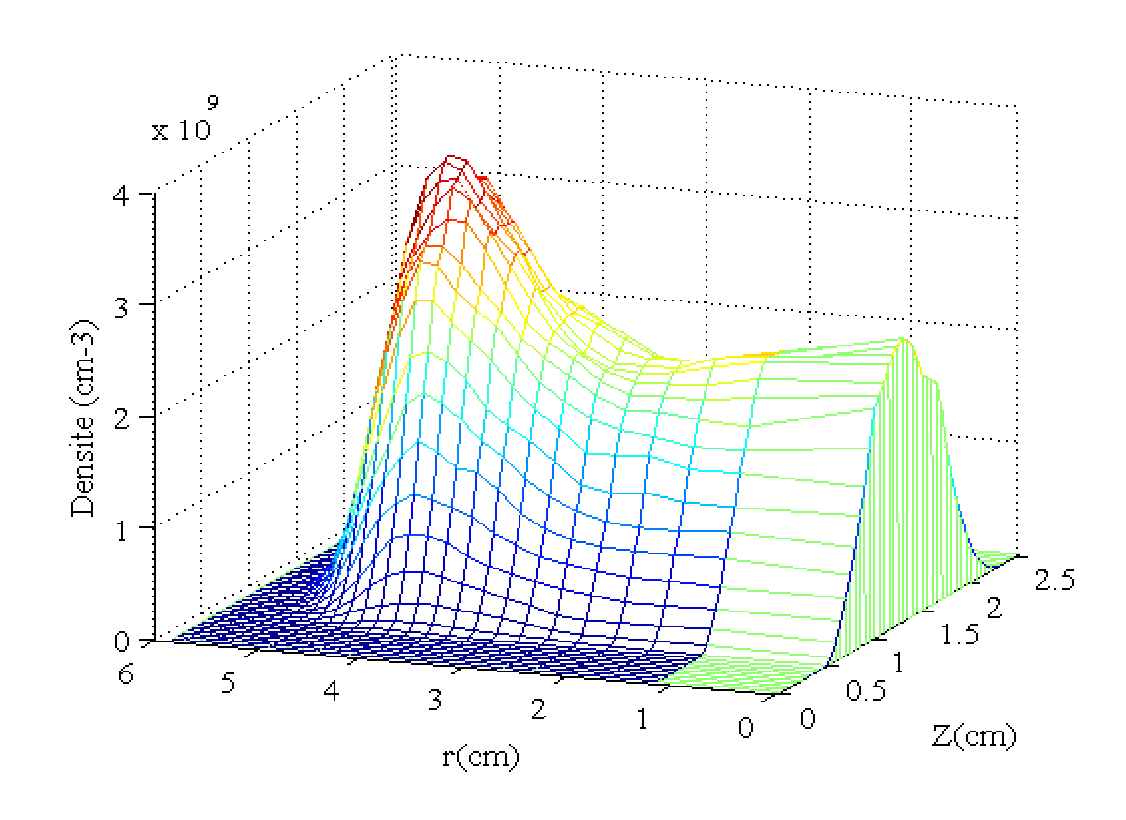


Fig. III-30 : Variation spatiale de la densité électronique à l'instant t=0%T

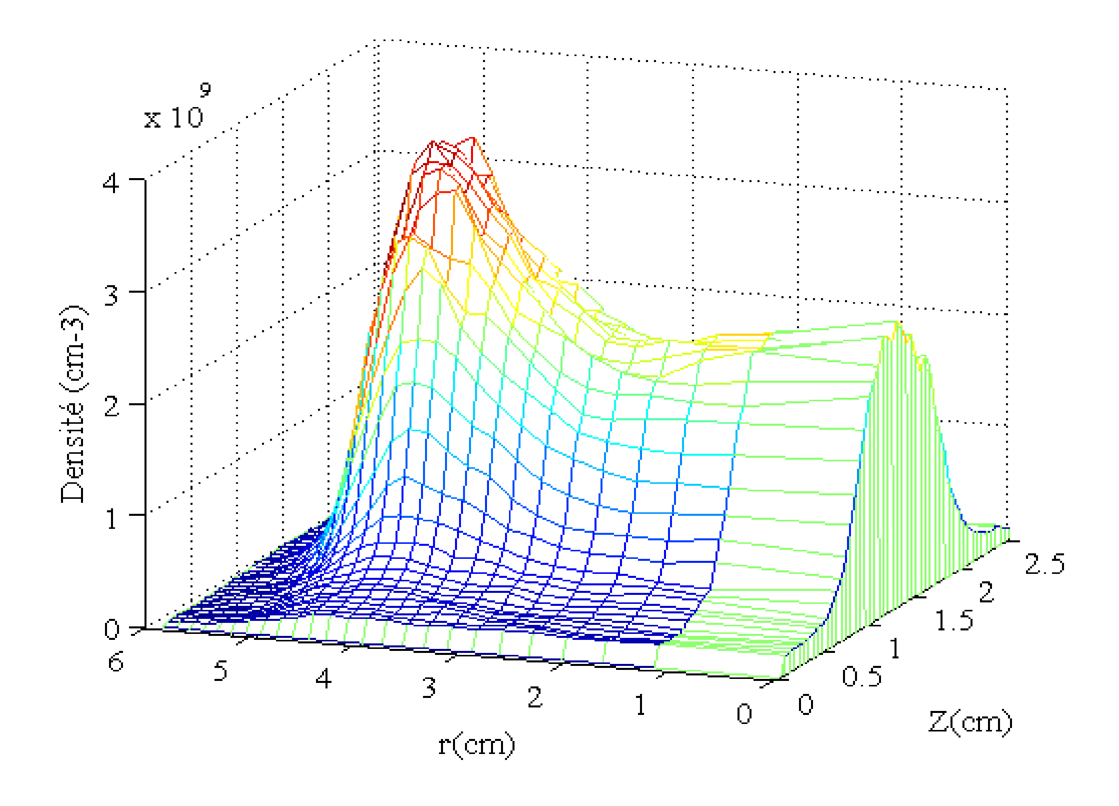


Fig. III-31 : Variation spatiale de la densité ionique à l'instant t=0%T

III.4.2 effet de la pression

Dans les mêmes conditions précédentes. La figure III-32 et la figure III-33 illustrent respectivement les contours de la densité électronique pour une pression de 50 mTorr et 100 mTorr. Ces figures montrent que le volume occupé par le plasma augmente avec l'augmentation de la pression du gaz (le premier contour représente une densité de 1×10^{7} cm^{-3}, qui donne une indication de réduction de l'épaisseur de la gaine). Alors, les épaisseurs des gaines sont diminuées avec l'augmentation de la pression. Cela peut être expliqué par la diminution de la mobilité des ions positifs à cause de l'augmentation du nombre de collisions de transfert de charge et aussi les collisions élastiques. La densité des électrons dans le plasma présente une augmentation significative avec l'augmentation de la pression où la relation entre eux est presque linéaire, la densité maximale est de 3.5×10^{9} cm^{-3} pour une pression de 50 mTorr et de 6.5×10^{9} cm^{-3} pour une pression de 100 mTorr. Cette augmentation est la conséquence du grand nombre des collisions ionisantes.

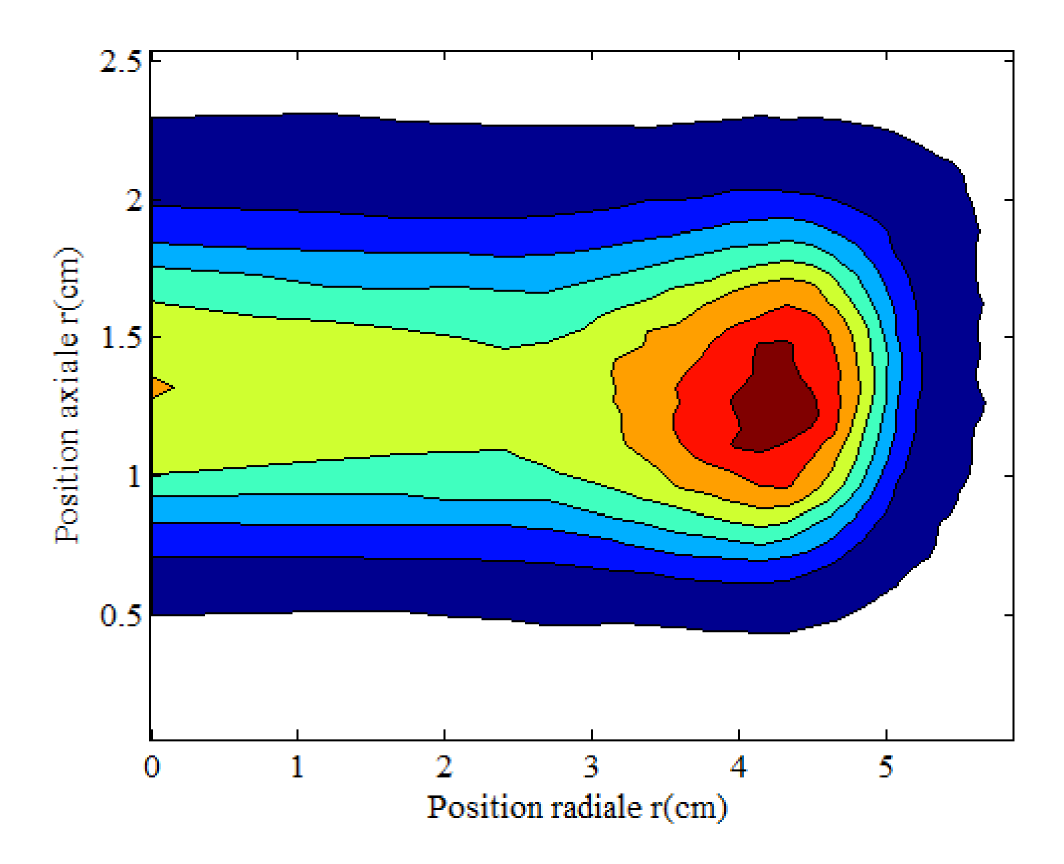


Fig. III-32 : Contours de la variation spatiale de la densité électronique à l'instant t=0%T pour une pression de 50 mTorr

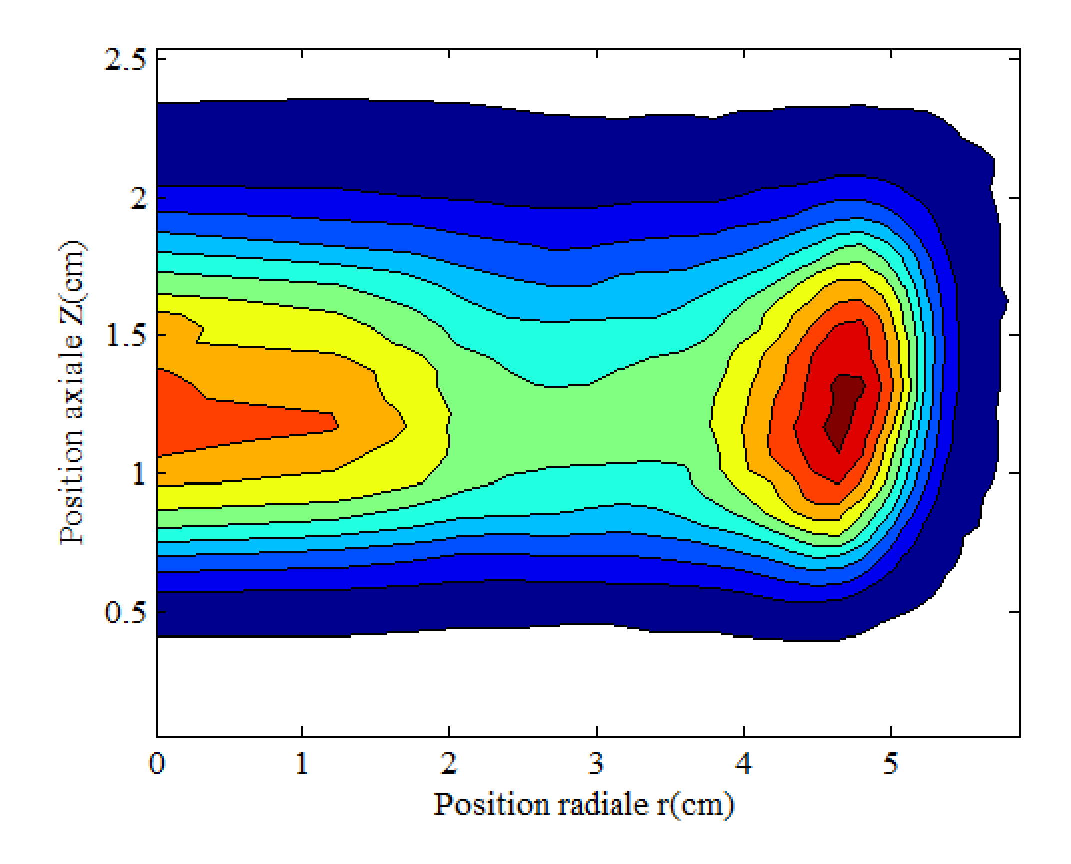


Fig. III-33 : Contours de la variation spatiale de la densité électronique à l'instant t=0%T pour une pression de 100 mTorr

III.5 Comparaison avec les résultats expérimentaux

Pour tester la validité du modèle, les résultats obtenus sont comparés avec les résultats expérimentaux de *Mike Hopkins*, ce dernier a mesuré la densité des électrons par deux techniques différentes, mesure directe par un interféromètre et mesure indirecte où il a estimé cette densité à travers la densité des ions avec un facteur de correction (*Mike Hopkins* [Ho-1]).

La Figure III-34 représente la comparaison entre les densités calculées au centre de décharge pour 50, 75 et 100 mTorr de pression et pour une tension de 13.56 Mhz de fréquence et de 200V de crête. On remarque que les résultats calculés sont en accord avec les résultats expérimentaux. La figure III-35 montre une comparaison entre les résultats calculés à une pression de 100 mTorr, pour différentes tensions radiofréquences. Les résultats calculés sont en accord avec les mesures de Bletzinger [Bl-1] et Overzet [Ov-1].

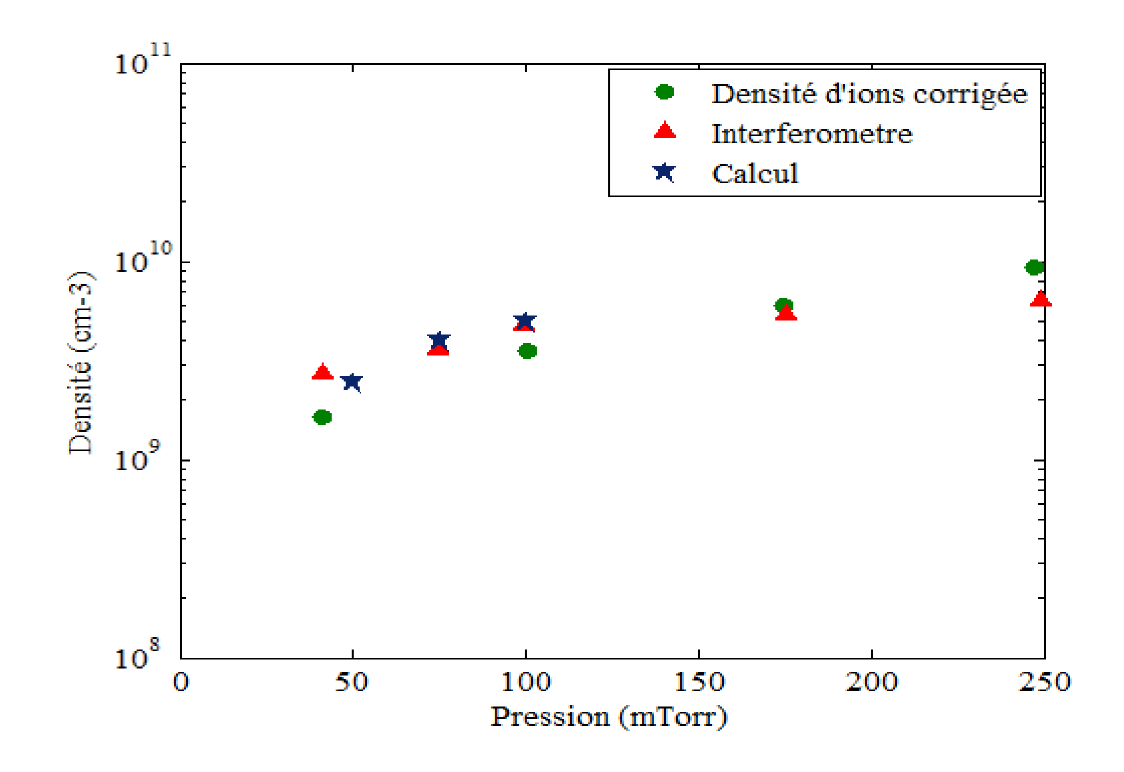


Fig. III-34 Comparaison entre les résultats calculés et les' expérimentaux, en variant la pression

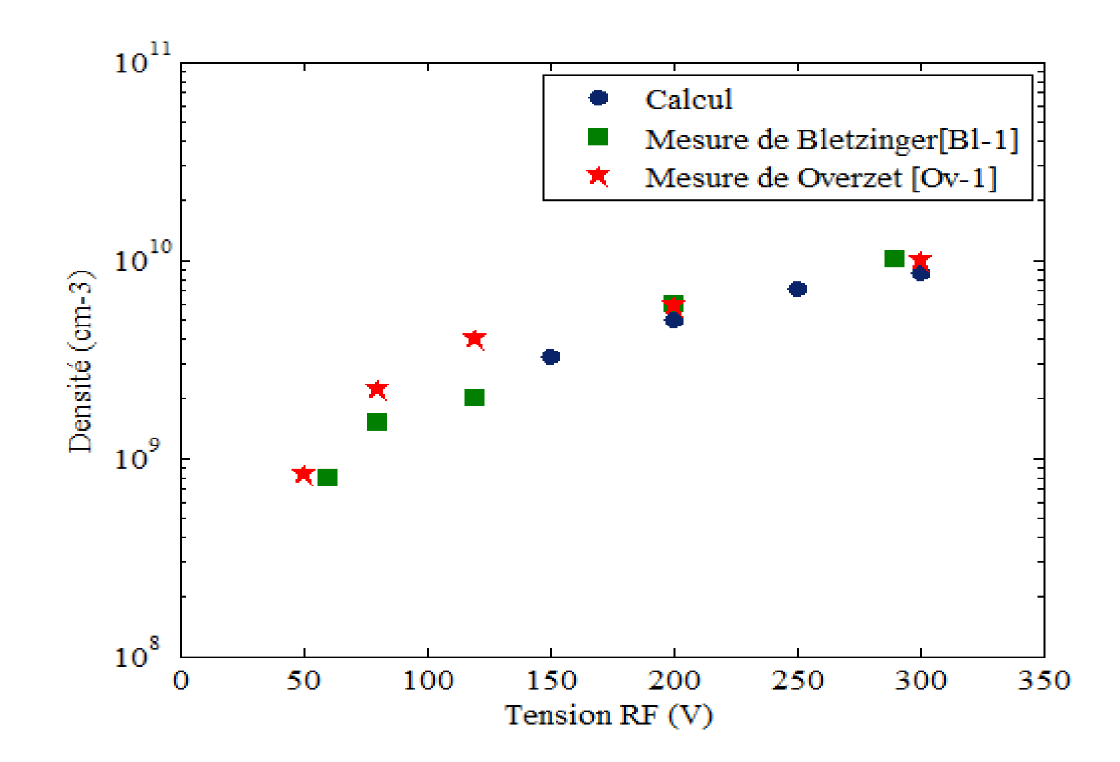


Fig. III-35 Comparaison entre les résultats calculés et les résultats expérimentaux, en variant la tension radiofréquence

A la fin de ce chapitre et pour montrer l'utilité du développement de ce modèle particulaire, qui se base sur l'estimation du libre parcours à la place du temps de vol libre pour le traitement des collisions. On a fait un test sur le temps de calcul (CPU time), et cela pour le même point de fonctionnement et les mêmes conditions initiales et aussi les mêmes données de base.

La figure III-36 montre une comparaison entre les densités électroniques obtenues aux différentes phases du cycle radiofréquence (0, $\pi/4$ et $3\pi/4$), pour une tension de 200V à 13.56 Mhz et une pression du gaz d'argon de 100 mTorr.

Les résultats sont en excellent accord. Mais avec un temps réduit par 10% lorsqu'on utilise le libre parcours pour le traitement des collisions.

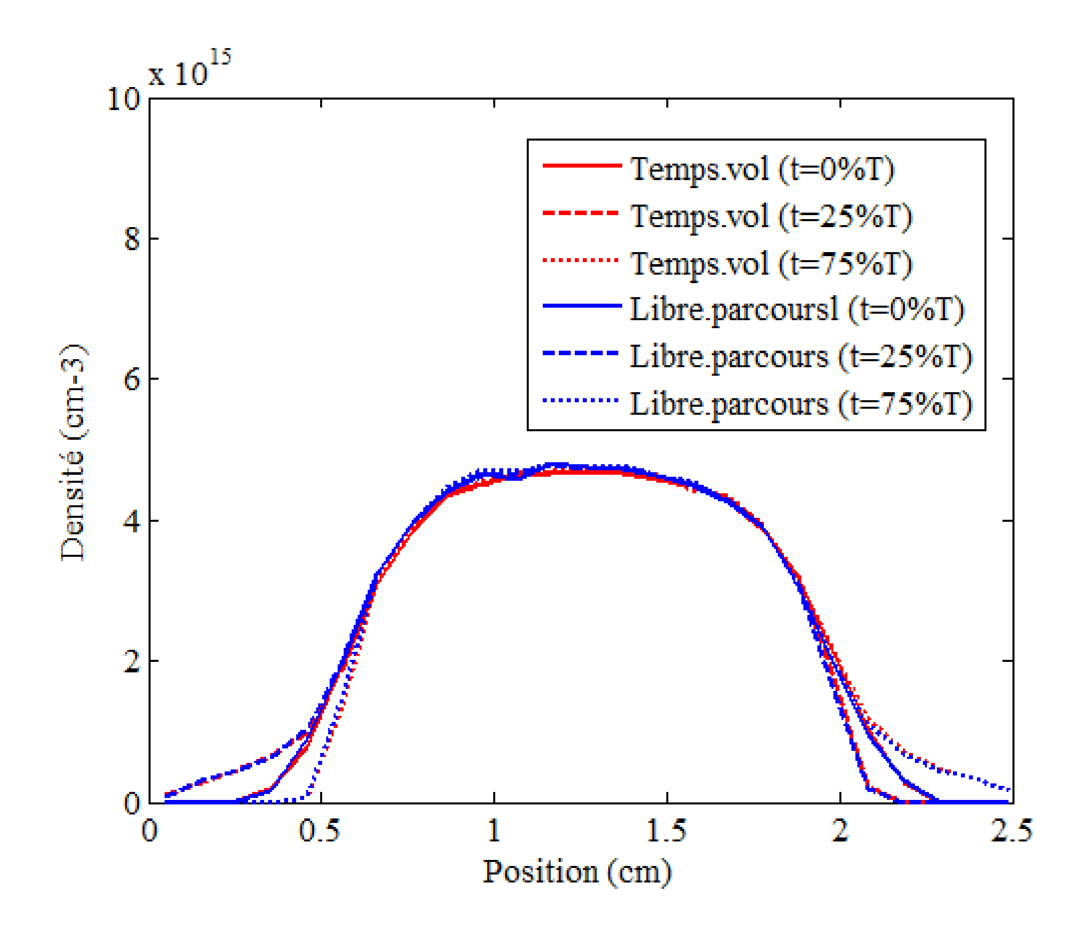


Fig. III-36 Comparaison entre les résultats calculés utilisant le temps de vol libre et le libre parcours pour le traitement des collisions

III.6 Conclusion

Le modèle PIC MC, basé sur l’estimation du parcours libre, développé dans le cadre de cette thèse, montre que les résultats calculés correspondent aux résultats expérimentaux. Ce qui valide le modèle. On a montré aussi dans ce chapitre la validité des sections efficaces utilisées. Notamment, les sections efficaces ioniques (Ar^+), qui sont calculées.

Le modèle montre également, un grand nombre de collisions effectuées par les électrons qui arrivent de la gaine vers le cœur de la décharge, ces collision sont maximum à la lisière gaine-plasma. Ce phénomène peut être expliqué par la diminution progressive de l’énergie moyenne d’électrons arrivés de la gaine vers le centre du plasma. La fonction de distribution d’énergie d’électrons (FDEE) calculée par ce modèle d’argon, présente une déviation à la distribution maxwellienne ; cet écart est inversement proportionnel à la pression du gaz. Cela montre l’utilité du modèle particulaire pour la simulation des plasmas crées par décharges électriques à basse pression. Enfin, le modèle proposé permet de réduire au maximum les collisions nulles, cela réduit le temps de calcul.

Le suivant chapitre est consacré à l’étude d’une décharge radiofréquence dans un mélange Argon-Oxygène, et cela en présence et en absence du champ magnétique.

CHAPITRE : IV

DECHARGE RADIOFREQUENCE DANS LE MELANGE Ar/O_2

ET INFLUENCE DU CHAMP MAGNETIQUE

IV.1 Introduction

Actuellement, l'un des plus importantes applications des plasmas réactifs à faible pression est le dépôt de couches minces de quelques dizaines de nanomètres à quelques micromètres par pulvérisation cathodique. Il y a quelque temps, ces procédés étaient réservés aux domaines spatial et aéronautique. Maintenant, ces procédés sont abordables économiquement, pour d'autres secteurs d'activité aussi variés que la décoration ou le biomédical. La plupart des machines de dépôt par pulvérisation fonctionnent en diode. Mais en particulier, lors de l'utilisation de cibles isolantes, l'utilisation d'un système radiofréquence est incontournable.

Dans le chapitre trois on a montré les caractéristiques d'une décharge radiofréquence dans le cas d'un gaz électropositif (Argon pur). Naturellement, les caractéristiques de la décharge vont être complètement différentes dans le cas de gaz ou de mélanges incluant un gaz électronégatif. Comme nous le verrons dans ce chapitre, la présence des ions négatifs va directement influer les épaisseurs des gaines et modifier les caractéristiques du plasma.

Pour avoir des flux ioniques très important dans les gaines, et par suite un taux de pulvérisation important, il est indispensable d'appliquer en plus du champ électrique RF, un champ magnétique (réacteur magnétron).

Dans ce chapitre et après la détermination des sections efficaces de différents types de collision, on montre les résultats obtenus dans un mélange Argon-Oxygène avec et sans champ magnétique. Ce mélange est souvent utilisé pour la pulvérisation cathodique pour la fabrication des nano-films d'oxyde.

IV.2 Données de Base dans le mélange Argon-Oxygène

IV.2.1 Sections efficaces de collision électron-neutre

La molécule d'oxygène O_2 est l'une des principales composantes d'atmosphère. L'oxygène joue également un rôle important dans le traitement de divers plasmas. Les décharges dans les mélanges d'oxygène sont d'une importance pratique, notamment parce que O_2 est l'une des plus simples gaz électronégatif avec basses états métastables.

Avant de montrer les résultats obtenus pour une décharge radiofréquence dans notre mélange Argon-Oxygène, il est nécessaire de sélectionner les sections efficaces de collisions *électron-neutre* à utiliser pour les différentes collisions considérées. Les collisions possibles dans le mélange argon-oxygène sont les suivants:

(1) $e^- + Ar$ -----------> $e^- + Ar$ (élastique)

(2) $e^- + Ar$ -----------> $e^- + Ar^*$ (excitation métastable)

(3) $e^- + Ar$ -----------> $2e^- + Ar^+$ (Ionisation)

(4) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O_2$ (élastique)

(5) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O_2(r)$ (excitation rotationnelle)

(6-9) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O_2(v=n, n=1,4)$ (excitation vibrationnelle)

(10) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O_2(a^1\Delta_g)$ (excitation métastable)

(11) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O_2(b^1\Sigma_g^+)$ (excitation métastable)

(12) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O + O^-$ (Attachement dissociatif)

(13) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O_2(A^3\Sigma_u^+, A'^3\Delta_u, c^1\Sigma_u^-)$ (excitation métastable)

(14) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O(^3P) + O(^1D)$ (Dissociation)

(15) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O(^1D) + O(^1D)$ (Dissociation)

(16) $e^- + O_2$ ----------->$2\,e^- + O_2^+$ (Ionisation)

(17) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O(^3P) + O(^3P)$ (Dissociation)

(18) $e^- + O_2$ -----------> $2e^- + O^+ + O$ (Ionisation dissociative)

(19) $e^- + O_2$ -----------> $e^- + O^* + O$ (Emission 135.6nm , 130.4 nm)

Les sections efficaces des collisions *électron-Argon (neutre)* sont celles utilisées dans le chapitre trois et la figure IV-1 montre les sections efficaces des collisions *électron-molécule d'oxygène neutre* [Yu-1].

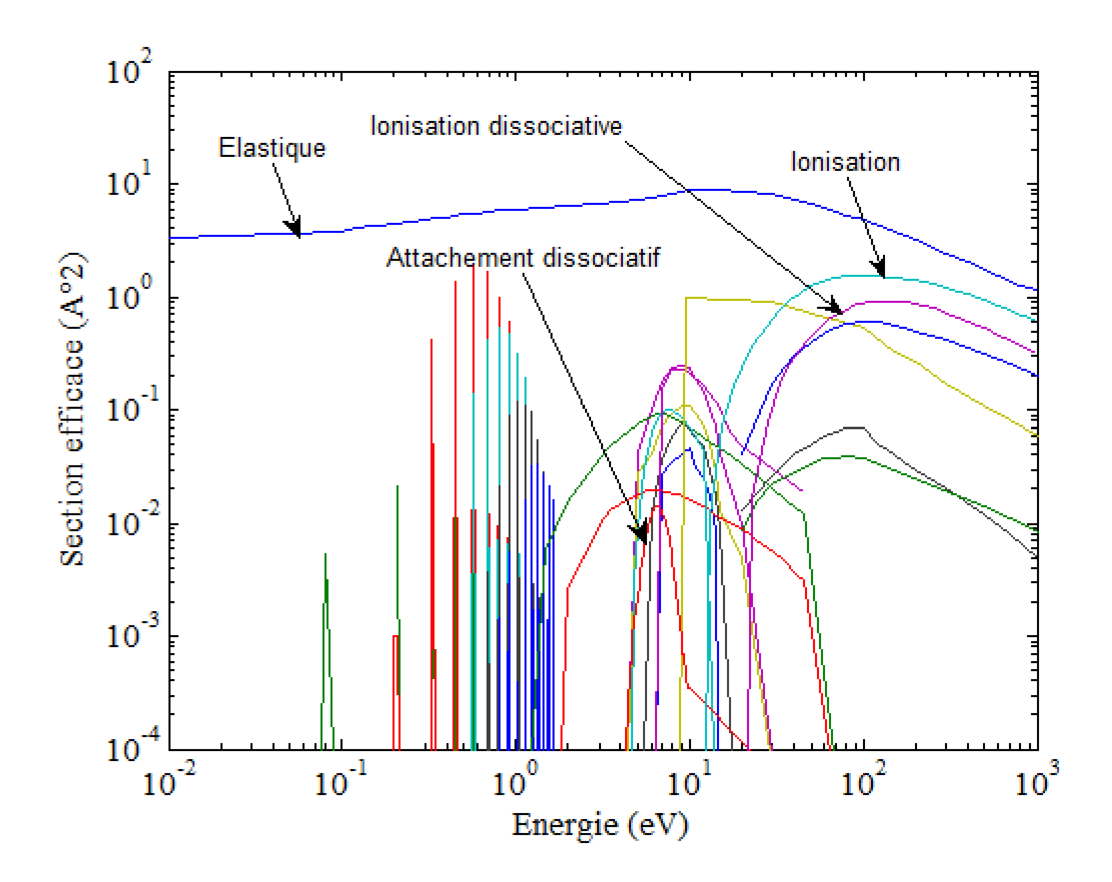


Fig. IV-1 : Sections efficaces de collision électron-Oxygène (molécule neutre)

IV.2.1 Sections efficaces de collision ion-neutre

Les ions dominants dans les décharges à basse pression pour un mélange Ar/O_2 sont : Ar^+, O_2^+ et O^-. La densité des ions O^+ et O_2^- est très faibles ([Yo-1],[Le-1], [Ag-1], [Sh-2]).

Les sections efficaces de collision, que ce soit pour les ions d'argon, ou les ions d'oxygène sont calculées en se basant sur une approche simple basée le potentiel d'interactions inter-particulaires. Plusieurs types de potentiel inter-particulaires sont décrits dans la littérature :

Potentiel de Thomas-Fermi : Il est possible d'écrire pour toute interaction, symétrique ou non, l'expression de son potentiel *U(r)* suivant la forme :

$$U(r) = \sqrt{A_1 A_2} \exp\left(-\frac{B_1 + B_2}{2} r \right) \quad \text{(IV-1)}$$

A_1, B_1 et A_2, B_2 sont les coefficients de Born – Mayer, des particules cible et projectile (1 et 2 respectivement). Abrahamson [Ab-1] donne, pour les atomes dont le nombre de charge est compris entre 2 et 105, les coefficients de Born - Mayer pour les potentiels d'interaction de ce type. r est la distance inter-particulaire

Potentiel en puissance de r : Ce potentiel est donné par l'expression suivante :

$$U(r) = \frac{V_0}{r^n} \quad \text{(IV-2)}$$

Généralement n=4 dans le cas du potentiel classique de polarisation, et V_0 est déterminé à partir de la polarisabilité de la particule cible (voir par exemple Lieberman [Li-1]).

Potentiel de Morse : Le potentiel de Morse [Mo-1], nommé d'après le physicien Philip Morse, est applicable pour une molécule diatomique. Ce potentiel est donné par l'expression suivante :

$$U(r) = D_e \left[\exp\left(-2\,\beta\left(r - r_m\right)\right) - 2\exp\left(-\beta\left(r - r_m\right)\right)\right] \quad \text{(IV-3)}$$

D_e : est la profondeur du puits de potentiel, r_m la distance inter-particulaire correspondant à l'équilibre (c'est-à-dire correspondant au minimum du potentiel) et β un coefficient.

Potentiel de Lennard-Jones : Il est souvent utilisé pour décrire les interactions entre deux atomes au sein d'un gaz monoatomique. Son expression en fonction de la distance r entre les deux noyaux atomiques est :

$$U(r) = \frac{A}{r^{12}} - \frac{B}{r^6} \quad \text{(IV-4)}$$

A, B sont des coefficients proportionnels à l'énergie du puits de potentiel et à la distance minimale d'approche. Le terme à la puissance 6, terme attractif dominant à grande distance, porte le nom d'interaction de *Van der Waals*.

Potentiel Buckingham : Ce sont des potentiels très dissymétriques faiblement attractifs et dont la répulsion est plus forte que la partie répulsive du potentiel de Lennard-Jones. Son expression est :

$$U(r) = \frac{D_e}{\alpha - 6}\left[6\exp\left(\alpha\left(1 - \frac{r}{r_m}\right)\right) - \alpha\left(\frac{r}{r_m}\right)^6\right] \tag{IV-5}$$

Potentiel N core : Différents modèles de potentiels ont été utilisés pour décrire le cas d'interaction ion-atome, ces potentiels donnent des coefficients de transport en bon accord avec les mesures. Mais dans le cas d'un ion poly atomique avec le gaz parent, Mason et *al* [Ma-3] ont développé un modèle simple pour simuler le noyau sphérique rigide dans les systèmes non-polaire représenté par le potentiel central:

$$U(r) = \frac{\varepsilon_\omega}{2}\left[\left(\frac{r_m - a}{r - a}\right)^{12} - 3\left(\frac{r_m - a}{r_m}\right)^4\right] \tag{IV-6}$$

Où r_m et ε_ω sont respectivement la position et la valeur du puits de potentiel, r est la distance interatomique et a le diamètre du noyau rigide.

Dans le cas d'interaction entre les ions poly atomiques avec des molécules d'un gaz non-parent, le meilleur potentiel est donné par la relation suivante [Ne-1]:

$$U(r) = \varepsilon_\omega\left[2\left(\frac{r_m - a}{r - a}\right)^6 - 3\left(\frac{r_m - a}{r_m}\right)^4\right] \tag{IV-7}$$

Les collisions entre les ions et les neutres sont considérées isotropes. Pour déterminer la section efficace de collision, tout d'abord, il faut calculer le rayon d'interaction $R(\varepsilon_r)$ qu'est fonction de l'énergie relative ε_r, et cela par la résolution de l'équation de potentiel d'interaction. En fin, la section efficace est donnée par la relation suivante dans le cas d'un potentiel de polarisation (relation IV-2) :

$$\sigma(\varepsilon_r) = \pi\left(R(\varepsilon_r)\right)^2 \tag{IV-8}$$

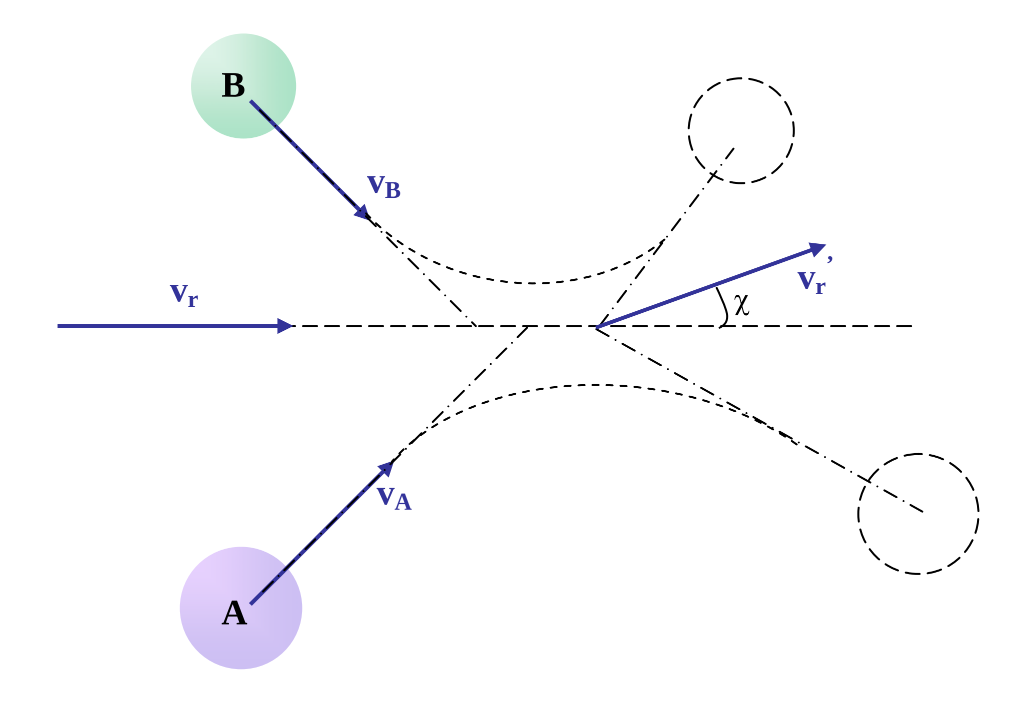


Fig. IV-2 : Schématisation d'une collision binaire avec un potentiel d'interaction

IV.2.1.1 Sections efficaces de l'ion Ar^+ dans le mélange Ar/O_2

Le potentiel d'interaction pour les collisions élastiques entre l'ion Ar^+ et Ar qui a été considéré est de type Morse où les paramètres sont : D_e =12.1meV, r_m =3.76$\mathring{A}$ et β =1.67$\mathring{A}^{-1}$ [Pa-2]. Par contre pour les collisions Ar+ avec O_2, c'est un potentiel de type Buckingham qui est considéré ; les paramètres de ce potentiel sont : D_e = 11.2meV, r_m = 3.69$\mathring{A}$ et α =13.77 [Lu-1].

Pour les collisions de transfert de charge résonant la section efficace est calculée à partir de l'équation (IV-9) où A= 21.35 $\mathring{A}$ et B = 1.34 $\mathring{A}$ [He-3] :

$$\sigma(v_r) = \frac{1}{2}\left[A - B\ln(v_r)\right]^2 \qquad \text{(IV-9)}$$

Où v_r est la vitesse relative et A, B sont des coefficients obtenus expérimentalement

En fin, pour les collisions de transfert de charge non-résonant le potentiel est considéré de type puissance [Me-3] où V_0=11.3$\mathring{A}^4$ et n =4. Les sections efficaces obtenues sont illustrées sur la figure IV-3.

Les potentiels d'interaction utilisés dans cette thèse donnent des sections efficaces en bon accord avec celles utilisées par Lee et al [Le-1], où les résultats obtenus sont validés expérimentalement.

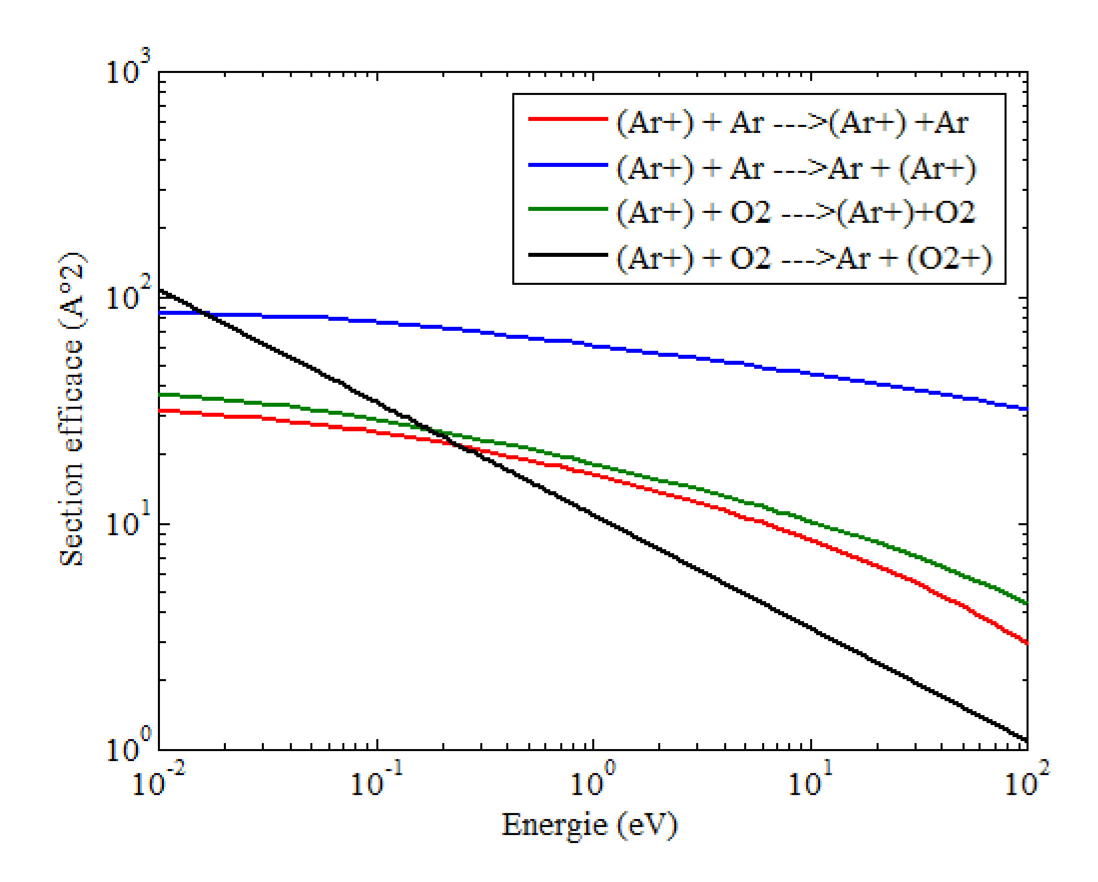


Fig. IV-3 : Sections efficaces de collision de Ar^+ dans le mélange (Ar/O_2)

IV.2.1.2 Sections efficaces de l'ion O_2^+ dans le mélange Ar/O_2

Pour les collisions élastiques O_2^+/O_2 on a utilisé le potentiel d'interaction de Buckingham où les paramètres sont : D_e = 11.4meV, r_m = 3.85A° et α =13.77 [Br-1]. Comme dans le cas d'argon la section efficace de transfert de charge résonant est calculée à partir de l'équation (IV-6) où A= 24.35 A° et B = 1.126A°[Mo-2].

Enfin, pour les collisions de transfert de charge non-résonant le potentiel est considéré de type puissance [Me-3] où V_0=11.84A$^{°4}$ et n =4. Les sections efficaces obtenues sont illustrées sur la figure IV-4.

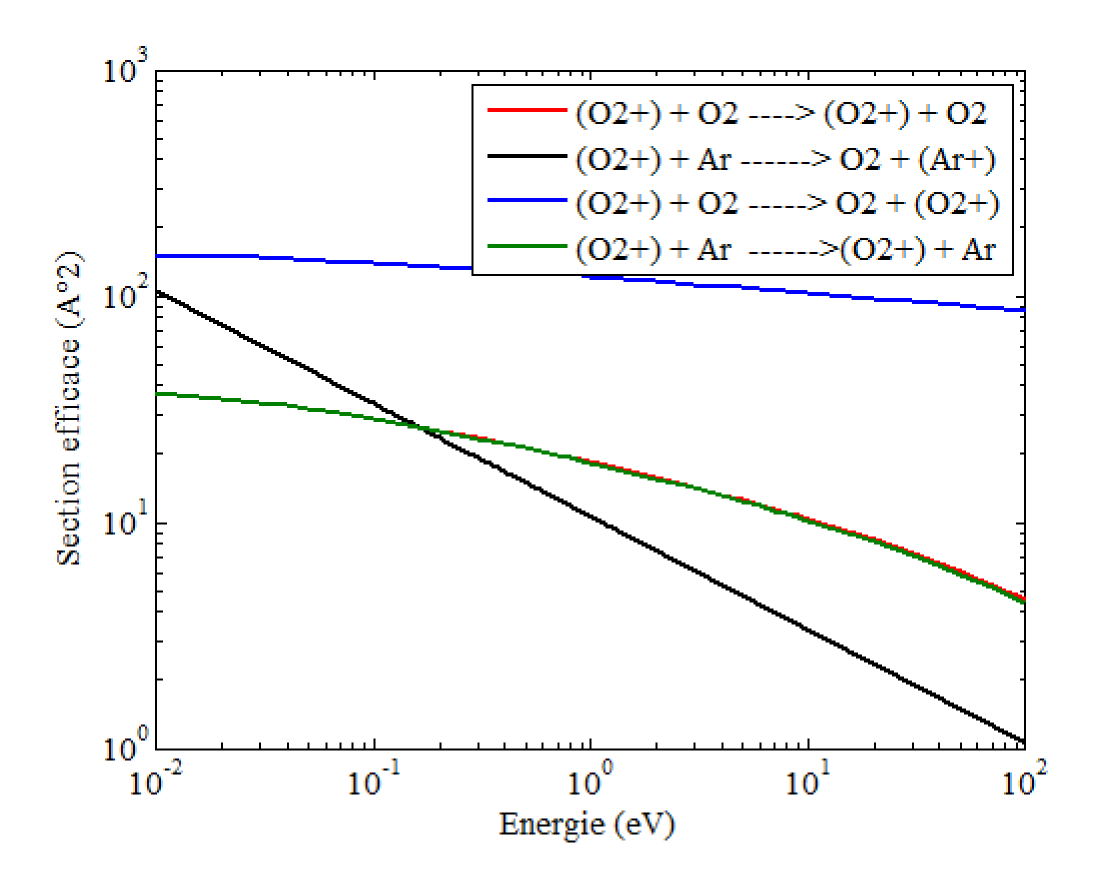


Fig. IV-4 : Sections efficaces de collision de l'ion O_2^+ dans le mélange (Ar/O_2)

IV.2.1.3 Sections efficaces de l'ion O^- dans le mélange Ar/O_2

Seules les collisions élastiques entre l'ion O^- et les neutres du gaz, ont été considérées. Pour les collisions avec les neutres d'Argon on a utilisé le potentiel de Thomas-Fermi, où ces coefficients sont : V_0 = 2140 eV, B = 3.35 $\mathring{A}^{-1}$ pour l'état ($^3\Pi$) et V_0 = 1665 eV, B = 3.605 $\mathring{A}^{-1}$ pour l'état ($^3\Sigma^-$) [Du-1] , tenant compte $V_0 = (A_1A_2)^{0.5}$ et $B = (B_1+B_2)/2$ dans l'équation (IV-1)

Pour les collisions avec les molécules neutres d'oxygène on a considéré le potentiel d'interaction est de Morse où : D_e =1.04eV, r_m =1.27$\mathring{A}$ et β =3.43$\mathring{A}^{-1}$ [Me-3]. La figure IV-5 montre ces sections efficaces calculées.

La disparition de l'ion O^- par les collisions de détachement avec la molécule d'oxygène (O_2), et l'atome d'argon (Ar), est très peu par rapport la disparition de cet ion négatif par les collisions de recombinaison avec les ions positifs Ar^+ et $O2^+$ [Li-1], [Yo-3], [Le-1].

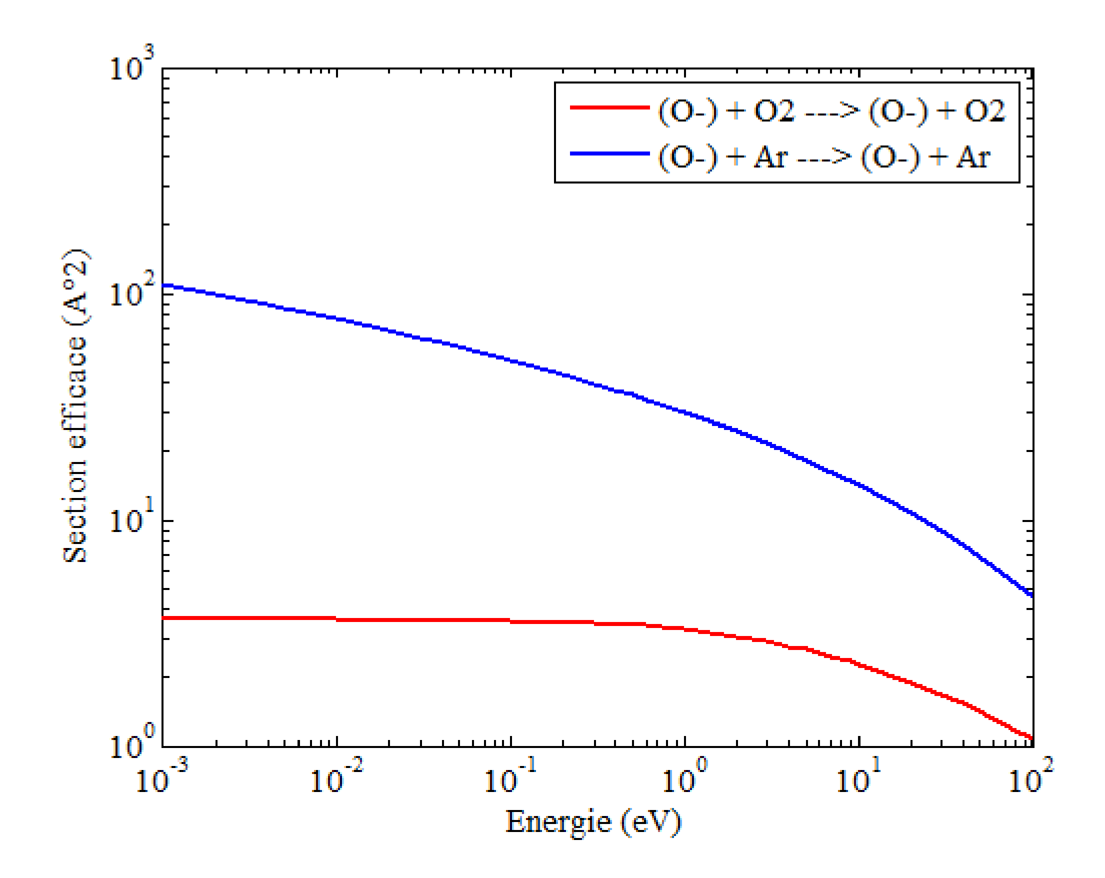


Fig. IV-5 : Sections efficaces de collision de l'ion O^- dans le mélange (Ar/O_2).

IV.2.1.4 Sections efficaces des réactions particule chargée – particule chargée

Dans les décharges radiofréquences à basse pression, les ions positifs sont dirigés vers les parois du réacteur où ils seront neutralisés. Par contre, les ions négatifs sont repoussés vers le centre de la décharge et s'accumulent dans cette région pour former un plasma électriquement neutre. Les processus de neutralisation des ions négatifs sont la recombinaison avec les ions positifs et/ou le détachement par impact électronique. Dans le cas d'une décharge radiofréquence dans le mélange Ar/O_2, la neutralisation de l'ion O^- se fait par les réactions suivantes :

(1) $O^- + O_2^+$ -----------> 3O (Taux : $1\times10^{-7}cm^3s^{-1}$ [Le-1])

(2) $O^- + O_2^+$ -----------> $O(^3P) + O_2$ (Taux :$1.5\times10^{-7}(300/T_g)^{0.5}$ cm^3s^{-1} [Gu-1])

(3) $e + O^-$ -----------> $2^e + O(^3P)$ (Taux :$1.1\times10^{-7}\exp(-3.58/T_e)$ cm^3s^{-1} [Gu-1])

(4) $O^- + Ar^+$ -----------> $O + Ar$ (Taux: $1.5\times10^{-7}cm^3s^{-1}$ [Li-1]).

où T_e est la température électronique exprimée en (eV) et T_g la température du gaz exprimée en K.

Yonemura et Nanbu [Yo-3] ont donné des expressions analytiques de la section efficace correspondant à chacune des expressions de taux de réaction précédents :

Forme analytique de Taux de réaction	**Forme analytique de la section efficace correspondante**
k_c (k_c :cost.)	$k_c.v_r^{-1}$ (v_r : vitesse relative)
$k_c.(300/T_g)^{1/2}$ (T_g :Temperature. du gaz)	$k_c.(\pi.k_B.300/2\mu_r)^{1/2}.v_r^{-2}$ (k_B:cost. de Boltzmann., μ_r: masse réduite)
$k_c.\exp(-\varepsilon_c/\varepsilon)$ (ε_c :cost.)	$k_c(m_e/2e)^{1/2}(\varepsilon-\varepsilon_c)^{1/2}/\varepsilon$ (e,ε,m_e : charge, énergie et masse de l'électron)

Tab IV.1 : Forme analytique du taux de réaction et la section efficace correspondante

Dans cette thèse, ces sections efficaces sont calculées à partir d'une simulation Monte Carlo. Rappelons que la méthode de monte Carlo nous permet de simuler le transport d'un nuage d'ions sous l'action d'un champ électrique et donc de déterminer les données de base macroscopiques telles que la mobilité, le coefficient de diffusion, le coefficient d'ionisation, le taux de réaction, etc. (*Hennad* [He-2]). Ces données de base sont calculables en utilisant les fonctions de distribution issues de la simulation Monte-Carlo mais une telle méthode amplifie les fluctuations statistiques et les données de base en sont affectées. Il est utile de se rappeler que pour atteindre un degré de précision donné sur le calcul des fonctions de distributions (FDE), il est nécessaire d'effectuer un grand nombre de collisions. La figure IV-6 montre la comparaison entre la section efficace calculée par l'expression analytique et celle calculée par la méthode de Monte Carlo, et la figure IV-7 montre les sections efficaces des collisions de recombinaison avec les ions O_2^+ et Ar^+.

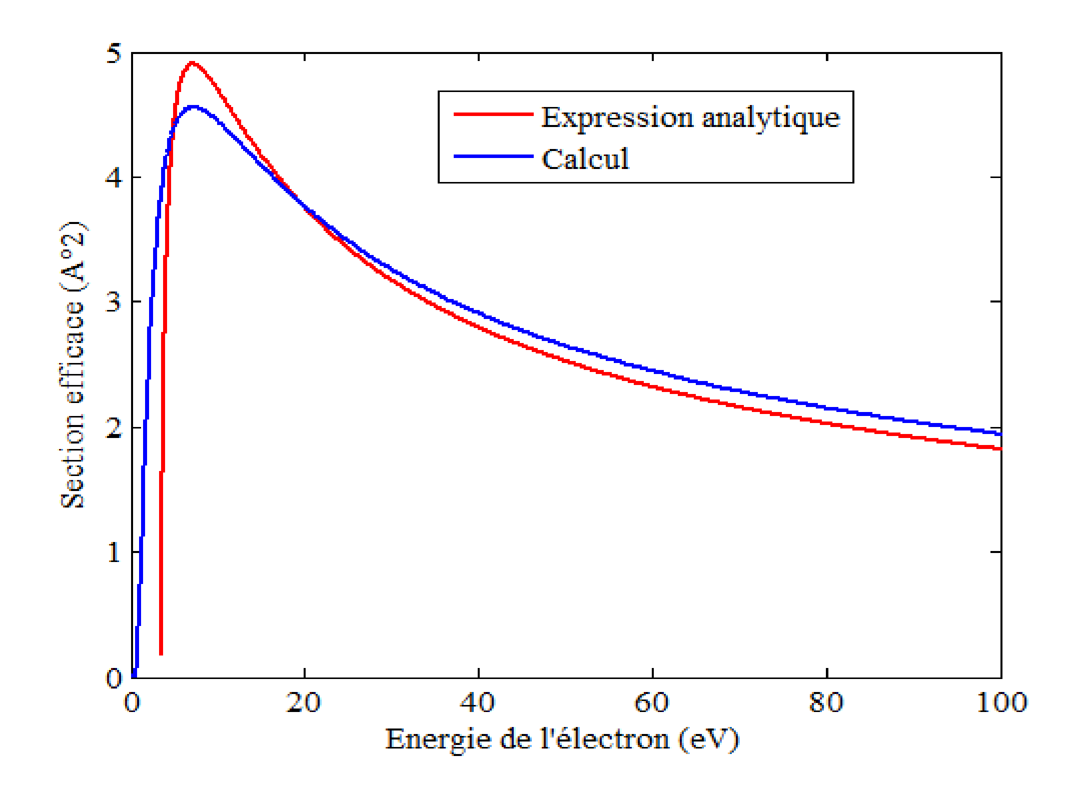


Fig. IV-6 : Comparaison entre deux méthodes de calcul de la section efficace de détachement par impact électronique

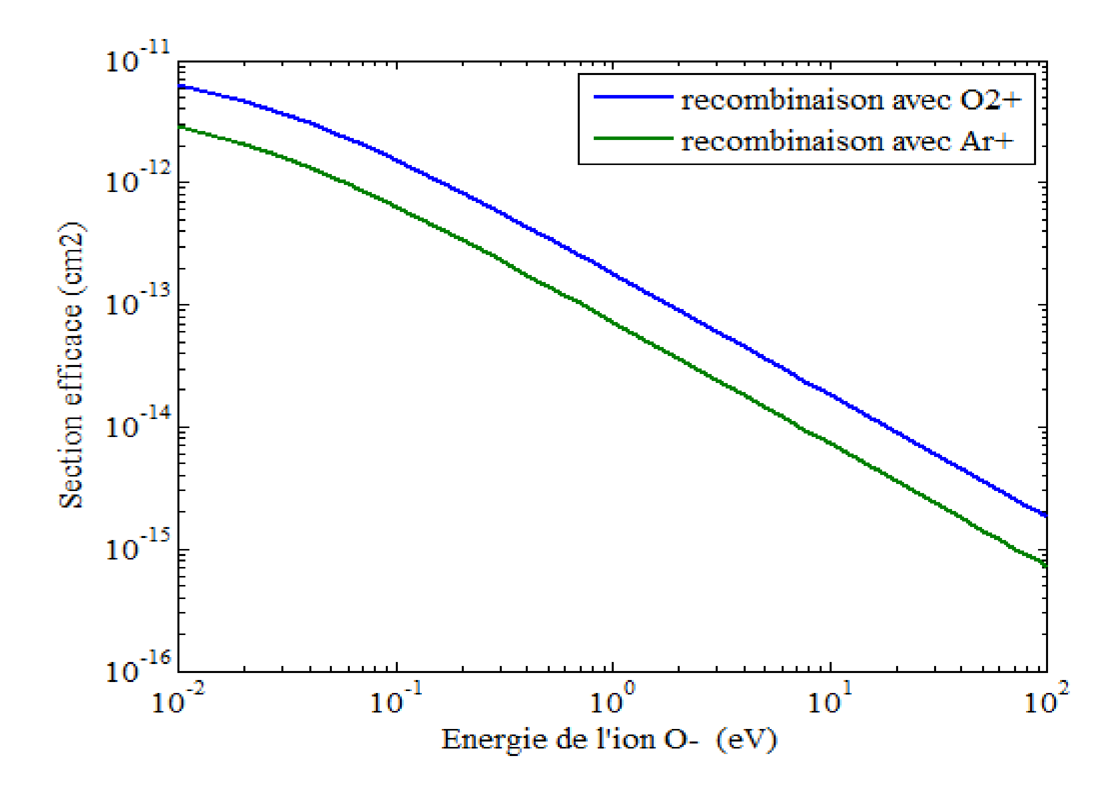


Fig. IV-7 : Section efficace de recombinaison de l'ion O^- avec l'ion Ar^+ et l'ion O_2^+

IV.3 Résultats obtenus dans le mélange Ar/O_2 sans champ magnétique

IV.3.1 Résultats dans l'oxygène pur

Avant de montrer l'effet de la présence de l'oxygène sur les caractéristiques de la décharge radiofréquence dans l'argon, il est préférable de montrer ces caractéristiques dans chaque gaz pur. Les caractéristiques dans l'argon pur sont déjà montrées dans le chapitre 3. Maintenant, on montre les caractéristiques de la décharge dans l'oxygène pur dans les mêmes conditions du chapitre 3 (tension radiofréquence de 200V, 13.56 MHz de fréquence pour une distance inter-électrode de 2.54 cm et une pression du gaz de 50 mTorr).

En commençant par les densités des espèces chargées où la figure IV-8 représente la variation spatio-temporelle de la densité électronique, la figure IV-9 montre la variation spatio-temporelle de la densité des ions O_2^+ et la figure IV-10 illustre la variation spatio-temporelle de la densité des ions O^-. Les densités des ions sont invariant durant le cycle radiofréquence que soit pour les ions O_2^+ où les ions O^-.

La neutralité du plasma est assurée par les ions négatifs O^-, formés notamment par attachement dissociatif entre par impact des électrons avec les molécules de l'oxygène. Cette densité est 1.87×10^9 cm^{-3} pour les ions O^- et 1.99×10^9 cm^{-3} pour les ions O_2^+.

Au centre de la décharge, la densité des électrons (de l'ordre de 1.24×10^8 cm^{-3}) est beaucoup plus faible que la densité des ions O^- ou O_2^+. Malgré ça, le rapport entre la densité électronique et la densité ionique est plus grand que dans le cas de décharge dans un gaz fortement électronégatif (SF_6, HCl, etc...) [No-1].

A cause de leurs grandes mobilités, les électrons se rassemblent dans la gaine cathodique durant sa contraction, et par suite la densité électronique augmente légèrement (voir fig. IV-8), le pic de densité correspond a l'instants $\omega t = \pi/2$.

À l'instant $\omega t = 3\pi/2$ les électrons sont poussés à la gaine anodique et par suite sa contraction et l'expansion de la gaine cathodique. L'accumulation maximale des électrons au voisinage de l'anode correspond au deuxième pic de la densité électronique.

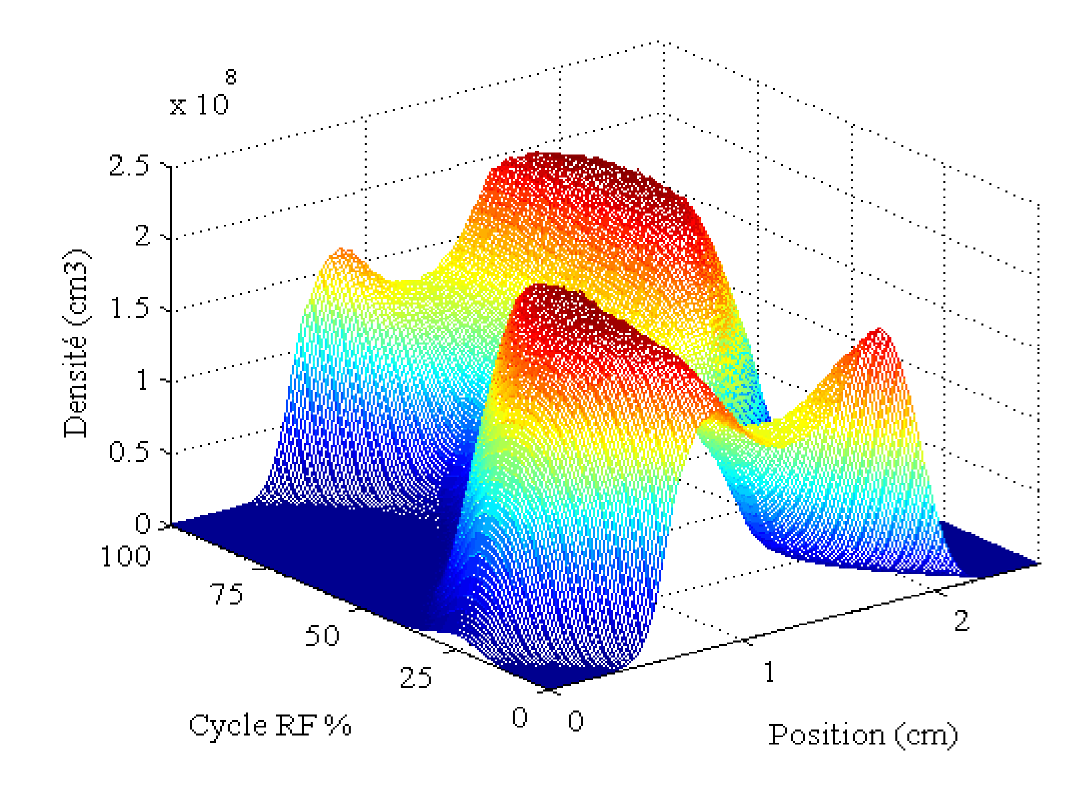


Fig. IV-8 : Variation spatio-temporelle de la densité électronique

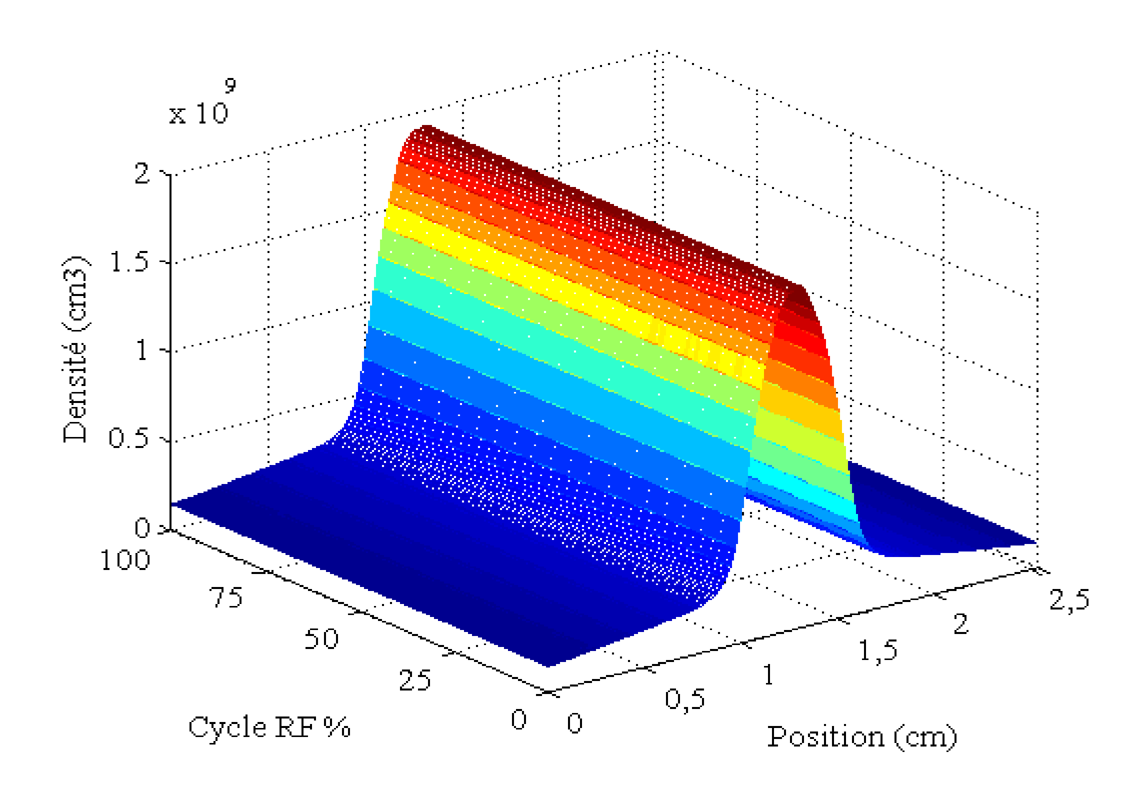


Fig. IV-9 : Variation spatio-temporelle de la densité des ions O_2^+

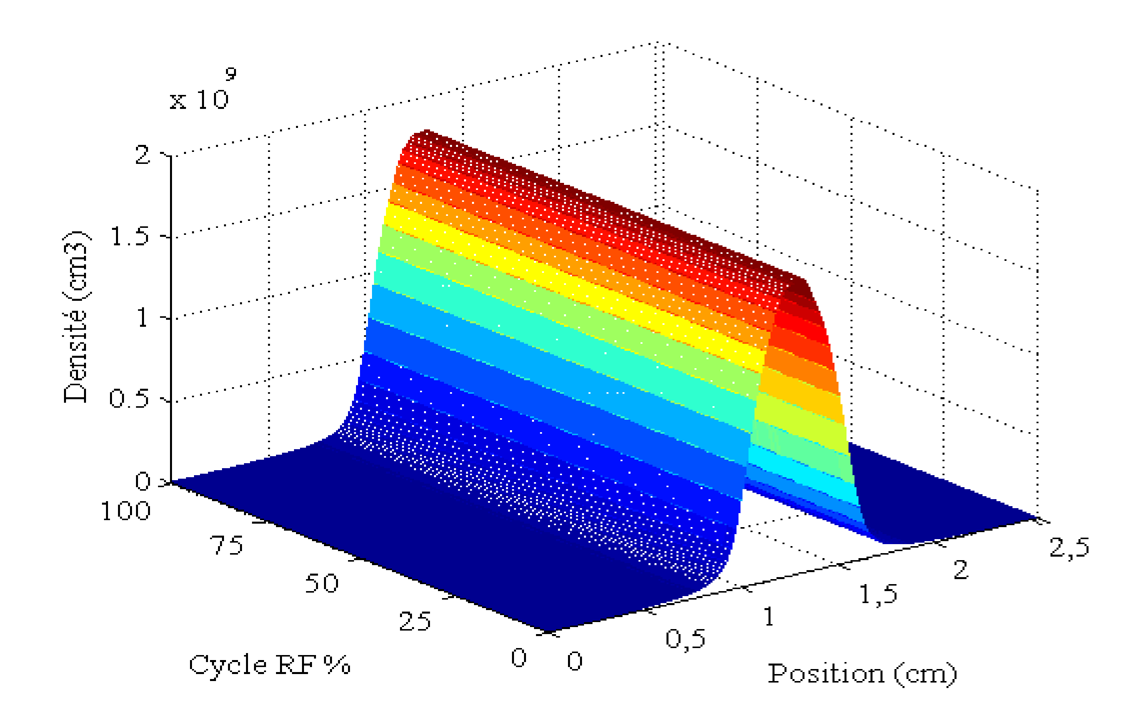


Fig. IV-10. Variation spatio-temporelle de la densité des ions O^-

La figure IV-11 représente la variation spatio-temporelle de l'énergie moyenne des électrons, cette énergie est importante dans les gaines particulièrement aux instants où la tension radiofréquence passe par le zéro. Le minimum est situé au centre de la décharge où il est indépendant des instants du cycle RF. Qualitativement, elle est semblable à celle des électrons dans le cas de décharge dans l'argon pur. Mais, quantitativement l'ordre de grandeur (6.5 eV) au centre de la décharge est plus important que dans le cas de décharge dans argon pur.

Dans la figure IV-12 on a montré la variation spatio-temporelle de l'énergie moyenne des ions O_2^+. Au centre de décharge, cette énergie est de l'ordre de l'énergie thermique 0.38eV, soit dix fois supérieur à l'énergie du gaz. Elle augmente progressivement jusqu'aux gaines. Cette énergie moyenne est plus importante que dans le cas d'argon à cause des processus de transfert de charge symétrique qui sont importants dans le cas d'une décharge d'argon pur. La variation spatio-temporelle de l'énergie moyenne des ions négatifs O^- est illustrée sur la figure IV-13. Cette énergie est importante à la lisière gaine-plasma, à cause de l'accélération par le champ électrique. Puis elle diminue jusqu'au centre, à cause de la perte d'énergie par suite des collisions.

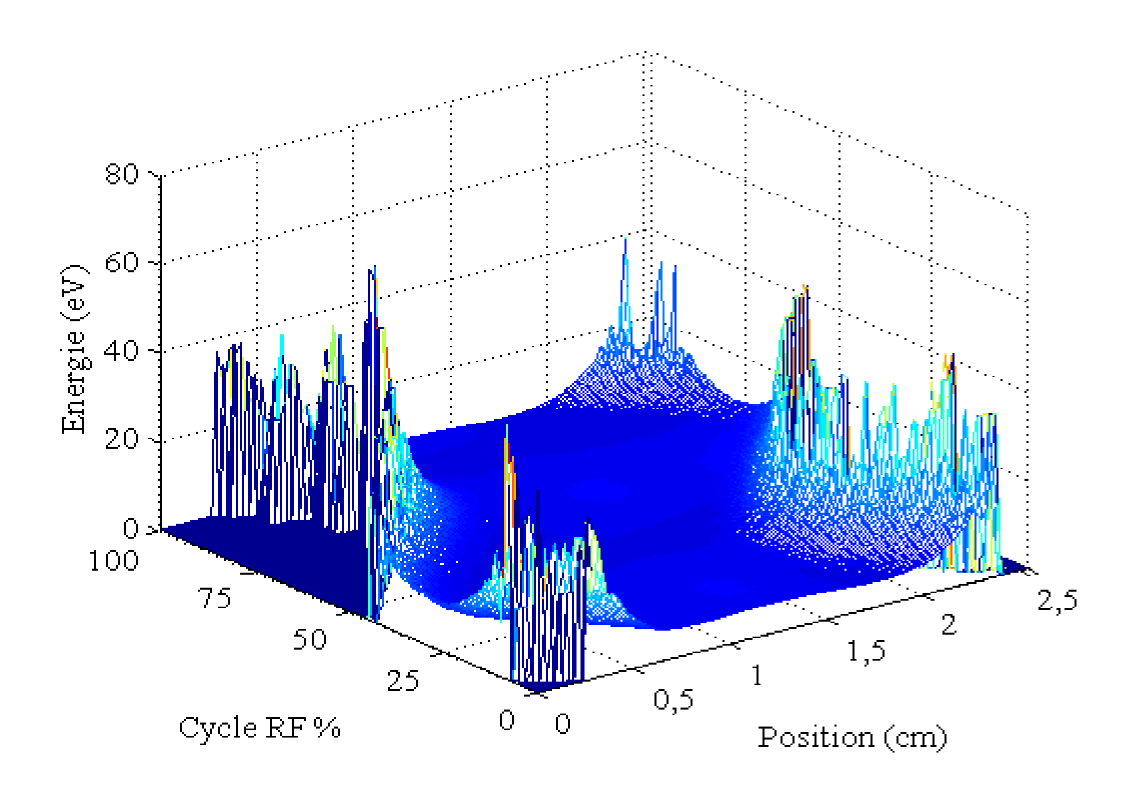


Fig. IV-11 : Variation spatio-temporelle de l'énergie moyenne des électrons.

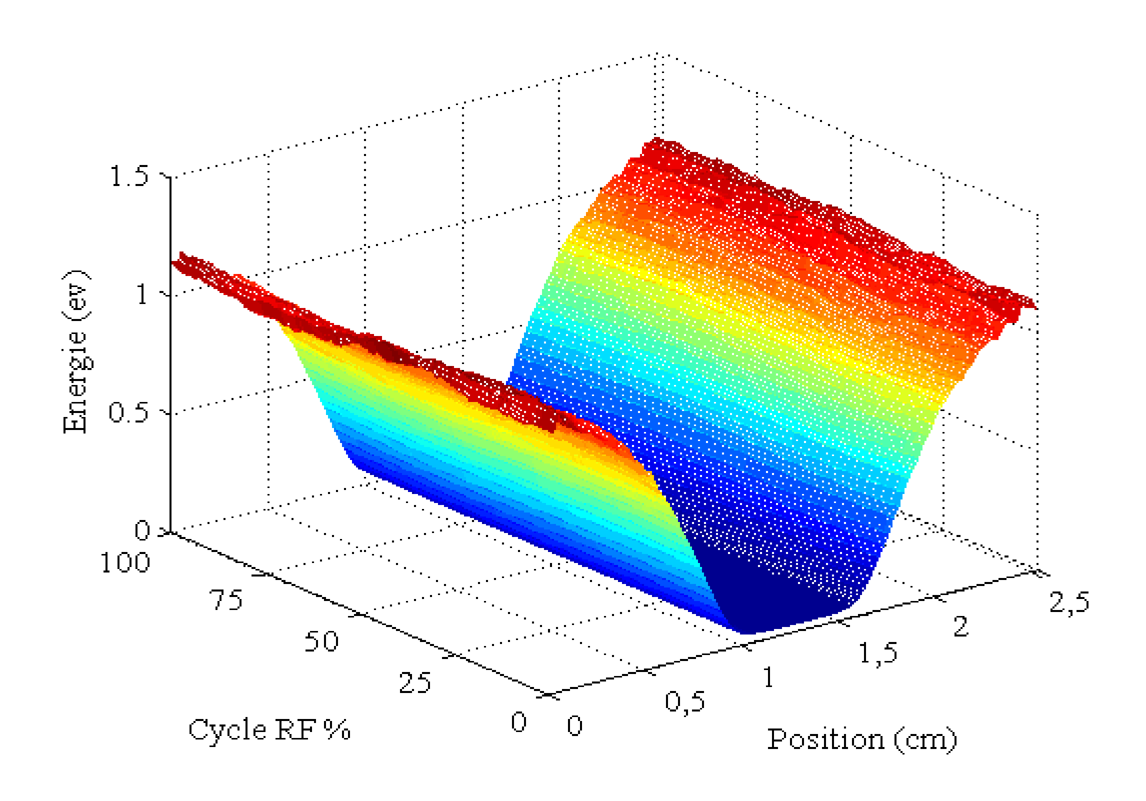


Fig. IV-12 : Variation spatio-temporelle de l'énergie moyenne des ions $O_2^{+\cdot}$

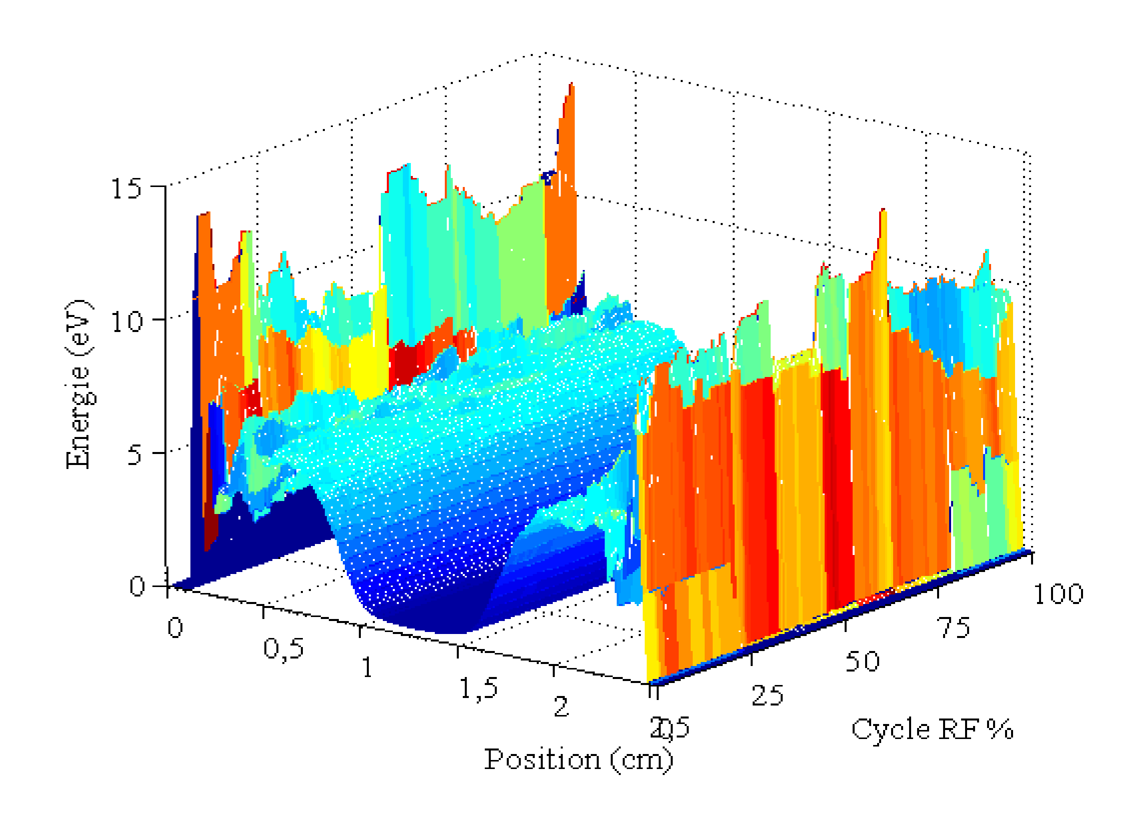


Fig. IV-13 : Variation spatio-temporelle de l'énergie moyenne des ions O^-

En raison de leur faible inertie, les électrons suivent instantanément les variations temporelles du potentiel RF notamment lorsqu'il atteint sa valeur maximale. C'est pourquoi à l'instant où la tension radiofréquence passe par son maximum (fig. IV-14), les électrons occupent la gaine anodique, cela entraine la neutralisation électrique de cette région avec un champ électrique qui devient très faible voire quasi nul. Par contre, dans l'autre gaine (gaine cathodique) le champ électrique passe par son maximum en valeur absolue. Ce comportement par rapport aux gaines sera inversé à l'instant où le potentiel passe par son minimum (voir la figure IV-15). Dans la région du plasma (au centre de la décharge RF), le champ électrique est très faible durant toute la période de cycle radiofréquence à cause de la quasi-neutralité électrique de cette région.

La forme du champ électrique varie qualitativement de la même manière que dans le cas d'une décharge dans l'argon pur. Naturellement, sur le plan quantitatif, le champ électrique est moins important dans le cas de la décharge dans l'oxygène pur que dans l'argon pur à cause des gaines larges pour l'oxygène pur. Cette forme des gaines est la conséquence de la présence des ions négatifs et par suite de la diminution de la densité électronique.

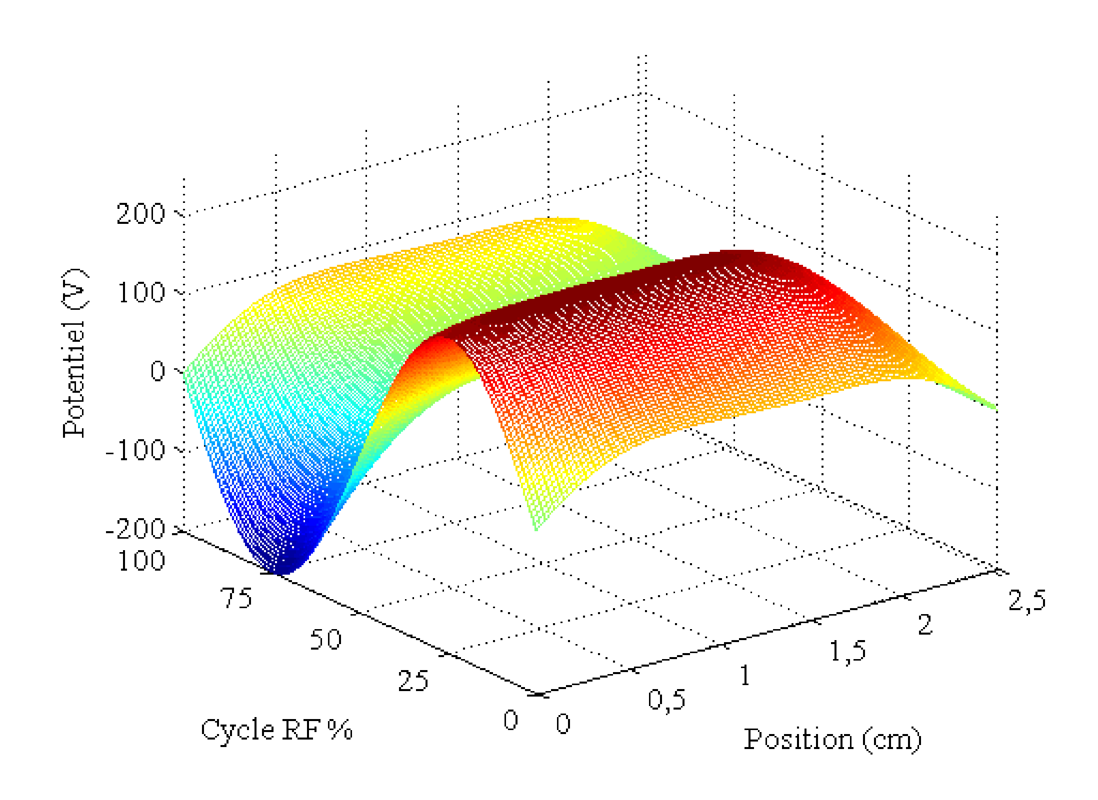


Fig. IV-14 : Variation spatio-temporelle du potentiel plasma

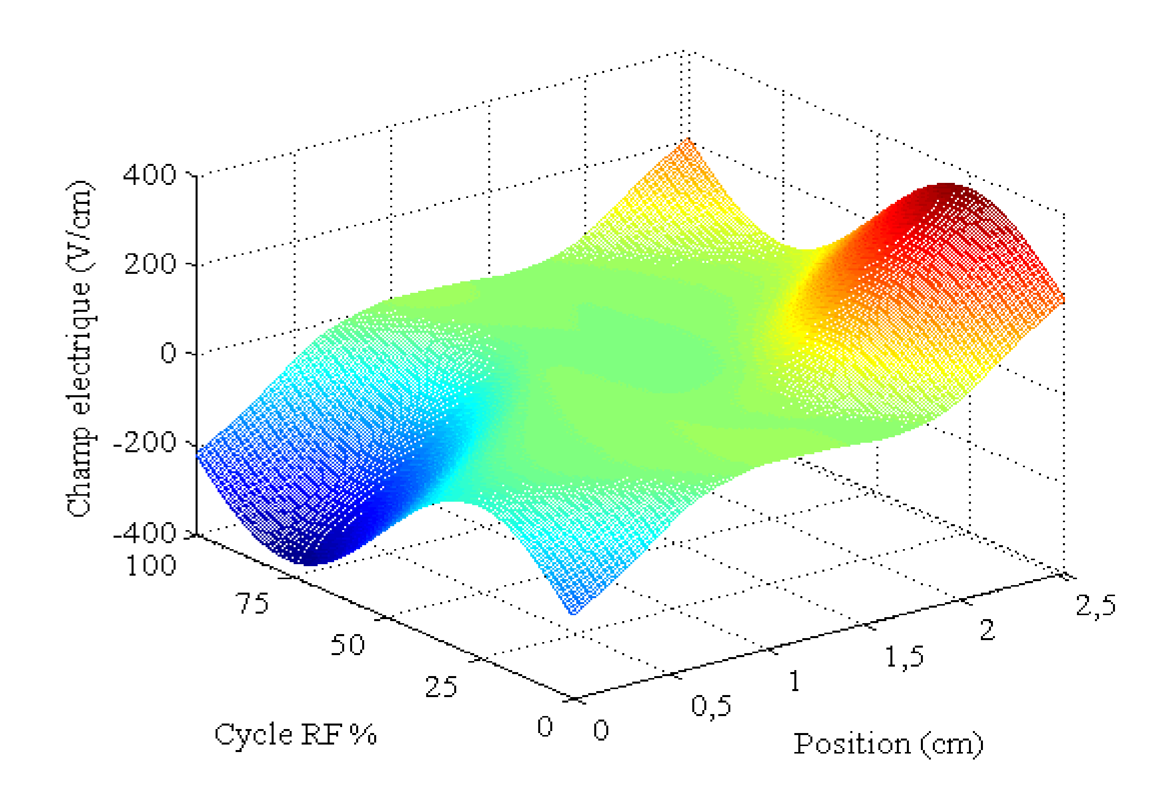


Fig. IV-15 : Variation spatio-temporelle de champ électrique

IV.3.2 L'influence de la concentration de O_2 sur les caractéristiques du plasma

Après avoir montré les caractéristiques de la décharge radiofréquence dans l'oxygène pur, et l'argon pur (chapitre 3). On montre maintenant l'influence de la concentration d'oxygène sur les caractéristiques de la décharge dans l'argon. Ces résultats sont très utiles pour le bon choix de la concentration d'oxygène à ajouter à l'argon pour les applications.

Les résultats suivants sont obtenus pour une tension radiofréquence de 200V et une fréquence de 13.56MHz avec une pression totale du gaz de 50 mTorr et une distance inter-électrode de 2.54 cm. Au titre d'exemple, la figure IV-16 représente la variation spatiale de la densité des particules chargées considérées pour un mélange (10%O_2 /90%Ar) où la densité des ions est invariable avec la contraction et l'expansion des gaines à cause de leurs faibles mobilités. Par contre, les électrons et à cause de leurs grande mobilité suivent instantanément les variations du champ électrique illustré dans la figure IV-17.

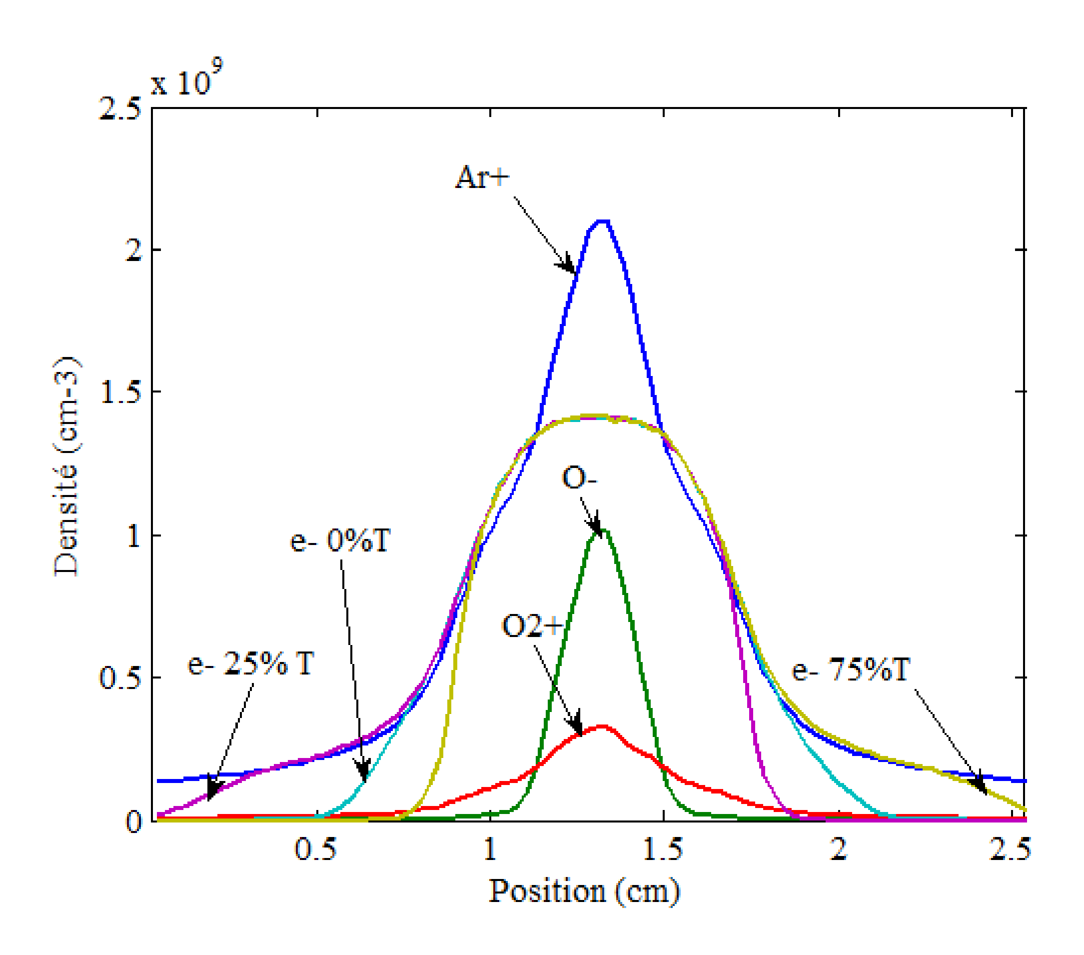


Fig. IV-16 : Variation spatiale des densités des particules chargées pour (10%O_2 /90%Ar) à différents instants du cycle RF

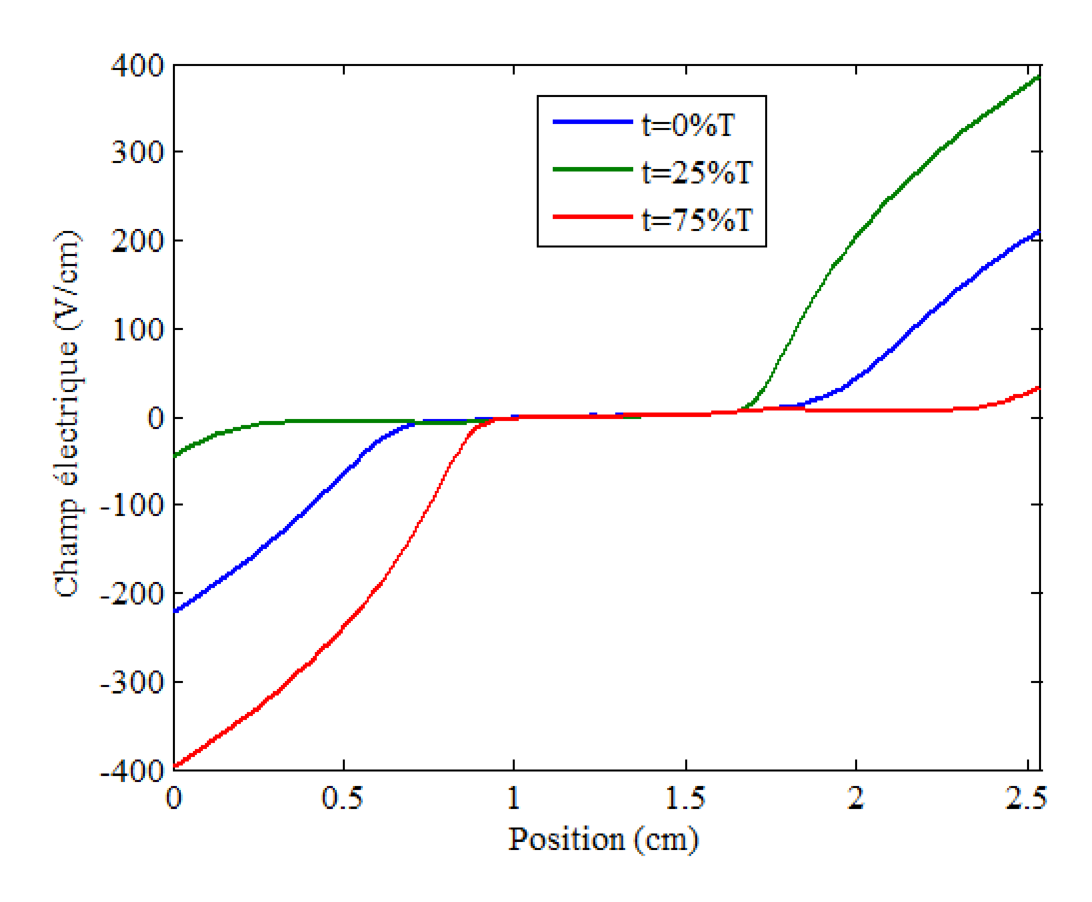


Fig. IV-17 : Variation spatiale de champ électrique pour (10%O_2 /90%Ar) à différents instants du cycle RF

La figure IV-18 montre la variation de la densité des particules chargées (e^-, O^-, O_2^+ et Ar^+) en fonction de la pression partielle d'oxygène dans l'argon. Ce sont les densités calculées au centre de la décharge. Comme prévue, la densité des ions d'argon (Ar^+) décroit presque linéairement avec la concentration de l'oxygène. Par contre, la densité des électrons décroit rapidement puis commence à saturer à partir d'un mélange contenant entre 40%O_2 et 60% d'Ar. Cette concentration des électrons assure la survie du processus d'ionisation des neutres et la circulation du courant électrique, qui assure par suite, la survie de la décharge électrique.

En fait, en présence d'un gaz électronégatif comme l'oxygène, les ions négatifs participent aussi avec les électrons à la neutralité électrique dans la région plasma. C'est pourquoi à partir d'environ 40¨% d'oxygène dans le mélange, on observe que les particules chargées négatives dominantes sont les ions O^-, avec une concentration qui augmente rapidement avec la concentration d'oxygène. Généralement, dans les décharges

radiofréquences, les ions négatifs sont piégés par l'expansion des gaines, le processus de la recombinaison est le seul processus responsable à la disparition de ces ions. Alors, le régime permanent est correspond à l'équilibre entre l'attachement dissociatif et la recombinaison. En même temps, pour les raisons de quasi-neutralité électrique dans la région plasma, la densité des ions O_2^+ augmente avec la concentration de l'oxygène pour compenser la diminution des ions d'argon (Ar^+).

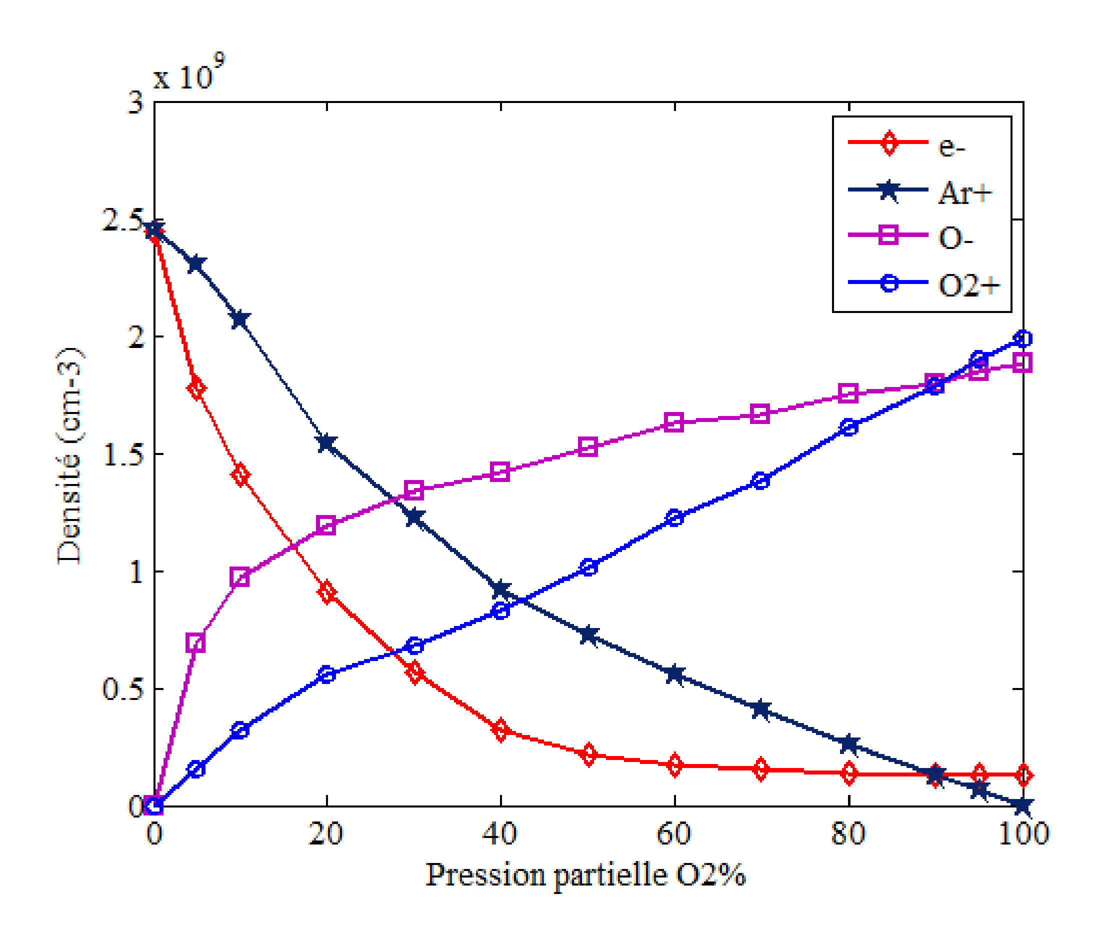


Fig. IV-18 : Variation de la densité des particules chargées avec la concentration de O_2

L'énergie moyenne des électrons au centre de la décharge est montrée dans La figure IV-19. Cette énergie diminue avec l'augmentation de la concentration de l'oxygène jusqu'à 10% où elle atteint le minimum. Ceci est dû à l'augmentation du nombre de collisions inélastiques plus important dans l'oxygène notamment les processus de collisions des niveaux vibrationnels et optiques. Après cette première baisse, l'énergie se met à augmenter en fonction de la proportion de O_2 en raison de l'augmentation des épaisseurs des gaines et du grand nombre d'électrons qui participent à la contraction et l'expansion de ces gaines.

La figure IV-20 montre que l'énergie moyenne des ions positifs d'argon (Ar^+) au voisinage de la cathode augmente avec l'augmentation de la concentration de l'oxygène. C'est le contraire qui est observé pour les ions positifs d'oxygène (O_2^+). Cela expliqué par l'effet important de transfert résonant de la charge qui est beaucoup plus efficace que le transfert de charge non-résonant que soit pour les ions d'argon (Ar^+) ou bien les ions d'oxygène (O_2^+). Il est important de rappeler que le transfert de charge résonnant transforme les ions rapides à ions lents qui se retrouvent avec l'énergie du gaz (0.038 eV) juste après la collision , ce qui naturellement contribue fortement à baisser l'énergie moyenne des ions lors de ces processus. Par contre, le flux d'ions (Ar^+) (fig. IV-21) qui est important dans le cas de l'argon pur se met à décroitre avec la diminution de la concentration du gaz parent. La même chose est observée pour le flux des ions (O_2^+). C'est une confirmation du rôle important joué par le transfert de charge résonant et par conséquent du rôle secondaire de l'effet de transfert de charge non-résonant. La valeur maximale de la densité du courant électrique dans la décharge décroit avec l'augmentation de la concentration de l'oxygène jusqu'à une proportion de 60% de O_2 où elle atteint le minimum avant de se mettre à augmenter (fig. IV-22).

Comme la densité de courant, la puissance dissipée est importante dans les cas extrêmes de concentration 100% d'argon et 100% d'oxygène. Partant de l'argon pur, elle décroit jusqu'à atteint le minimum pour une concentration de 50% O_2 (fig IV-23).

Dans le cas de l'argon pur la majorité des électrons sont dans le corps de la fonction de distribution des énergies électroniques (FDEE), ce nombre augmente avec l'augmentation de la concentration d'oxygène, à cause des collisions inélastiques plus importantes en augmentant le pourcentage de l'oxygène. Mais, à partir de 10%, les électrons sont accélérés à cause de l'augmentation des épaisseurs des gaines (fig. IV-24). Jusqu'à ce dernier pourcentage d'oxygène, l'énergie moyenne des ions d'argon (Ar^+) au voisinage de la cathode et leur fonction de distribution (FDEI) ne présentent aucunes variations significatives (fig IV-20, fig IV-25). Les ions d'oxygène (O_2^+) dans l'oxygène pur sont moins énergétiques que les ions argon (Ar^+) dans l'argon pur, malgré la gaine plus large qui est sensée favoriser l'accélération des ions. Cela montre que le rôle du transport par le champ peut être considérablement atténué par l'effet des processus collisionnels comme le transfert de charge résonant dans l'oxygène qui est plus important que dans l'argon.

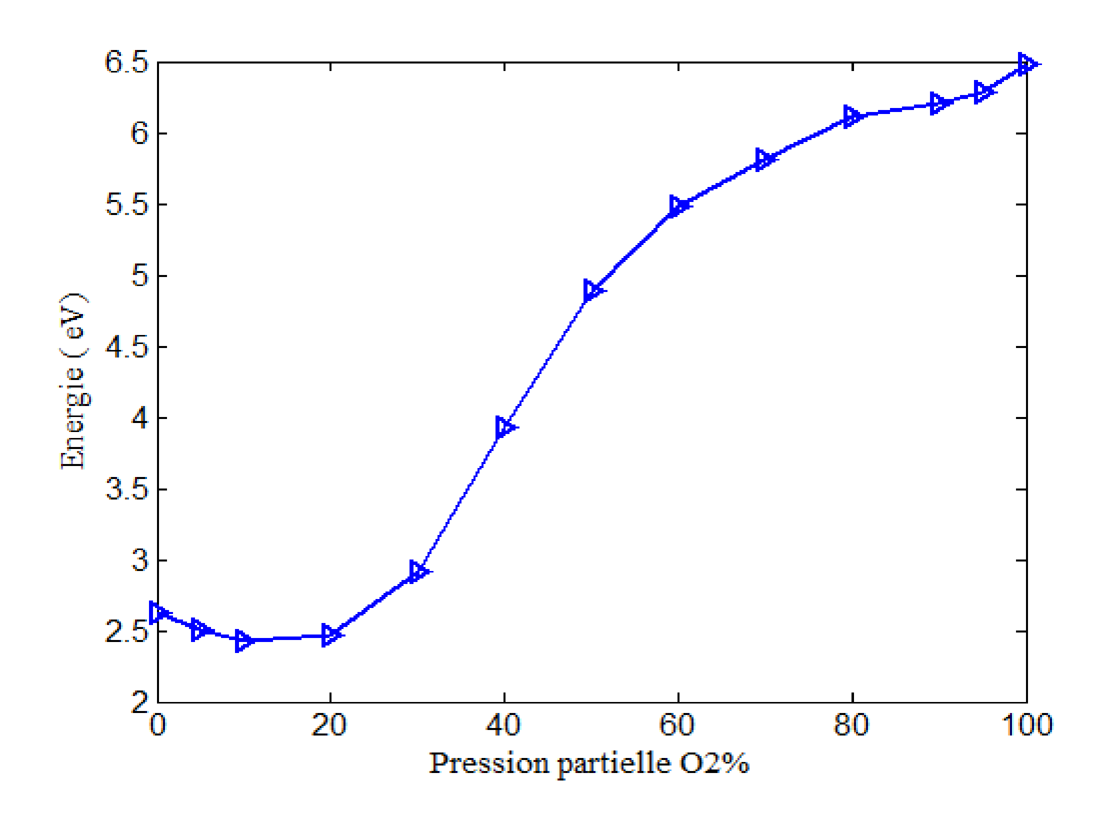


Fig. IV-19 : Variation de l'énergie moyenne des électrons avec la concentration de O_2

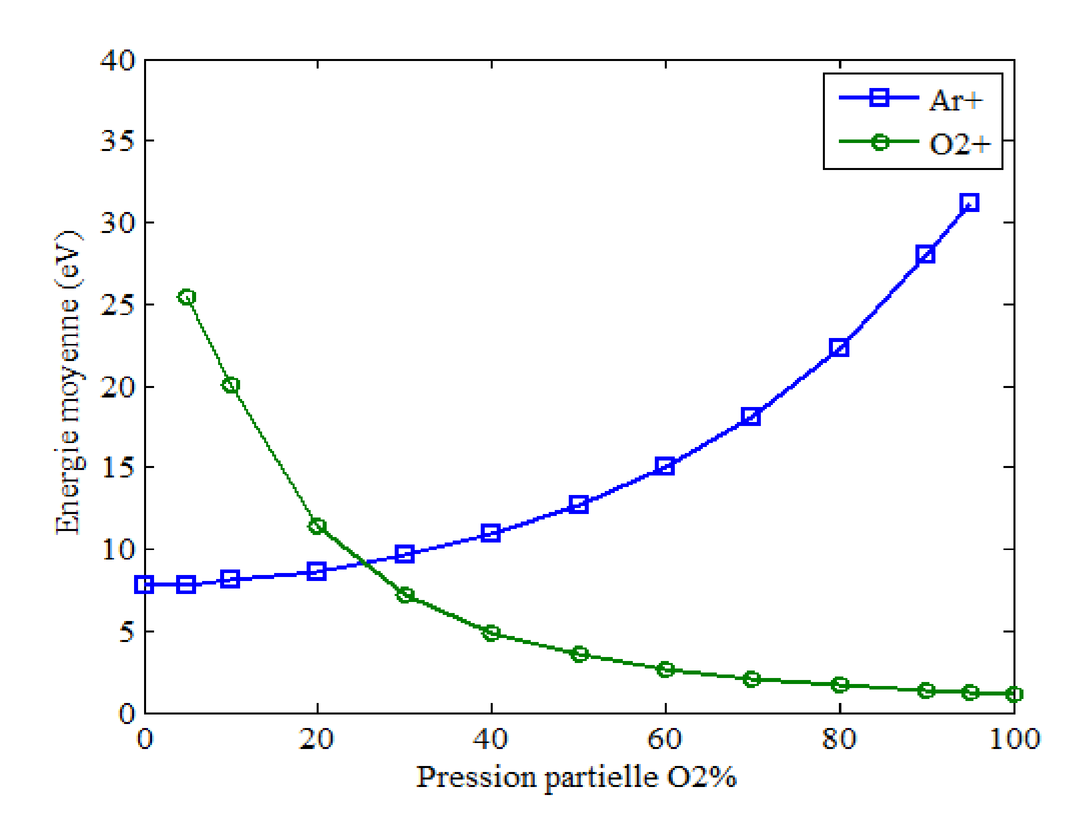


Fig. IV-20 : Variation de l'énergie moyenne des ions au voisinage de la cathode

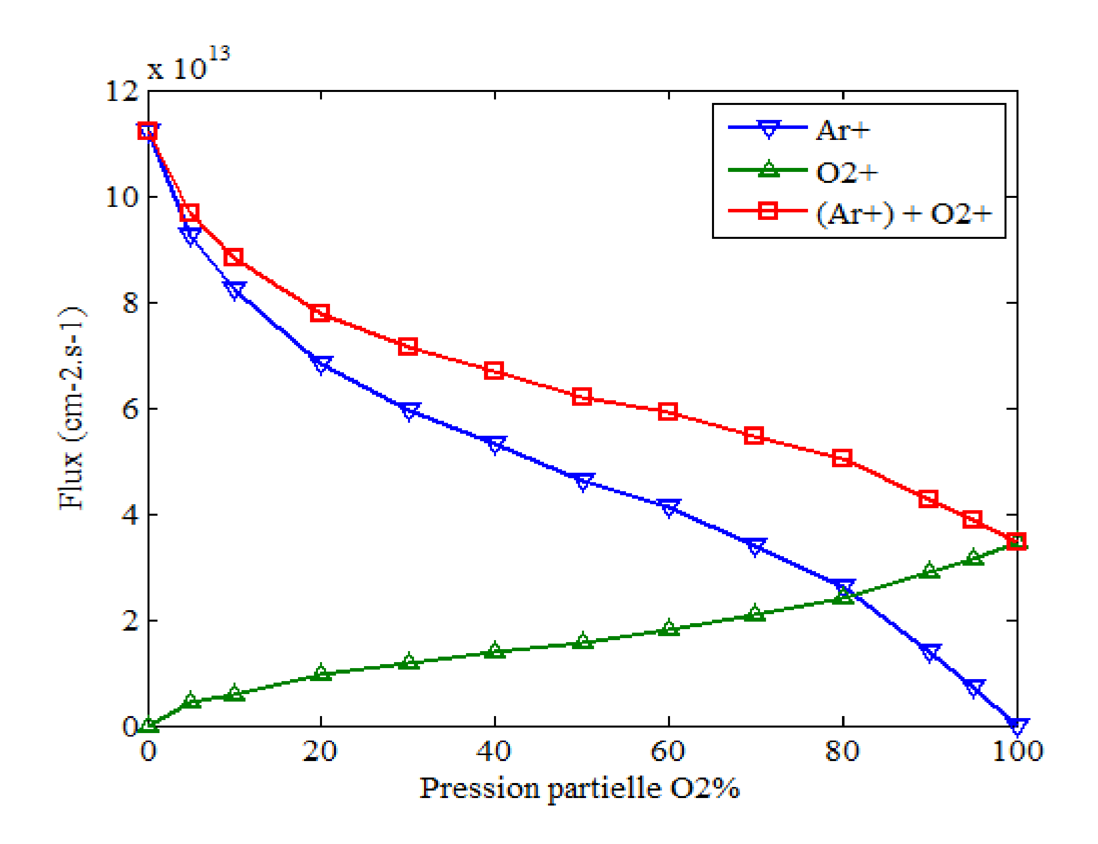


Fig. IV-21 : Variation de flux ionique au voisinage de la cathode

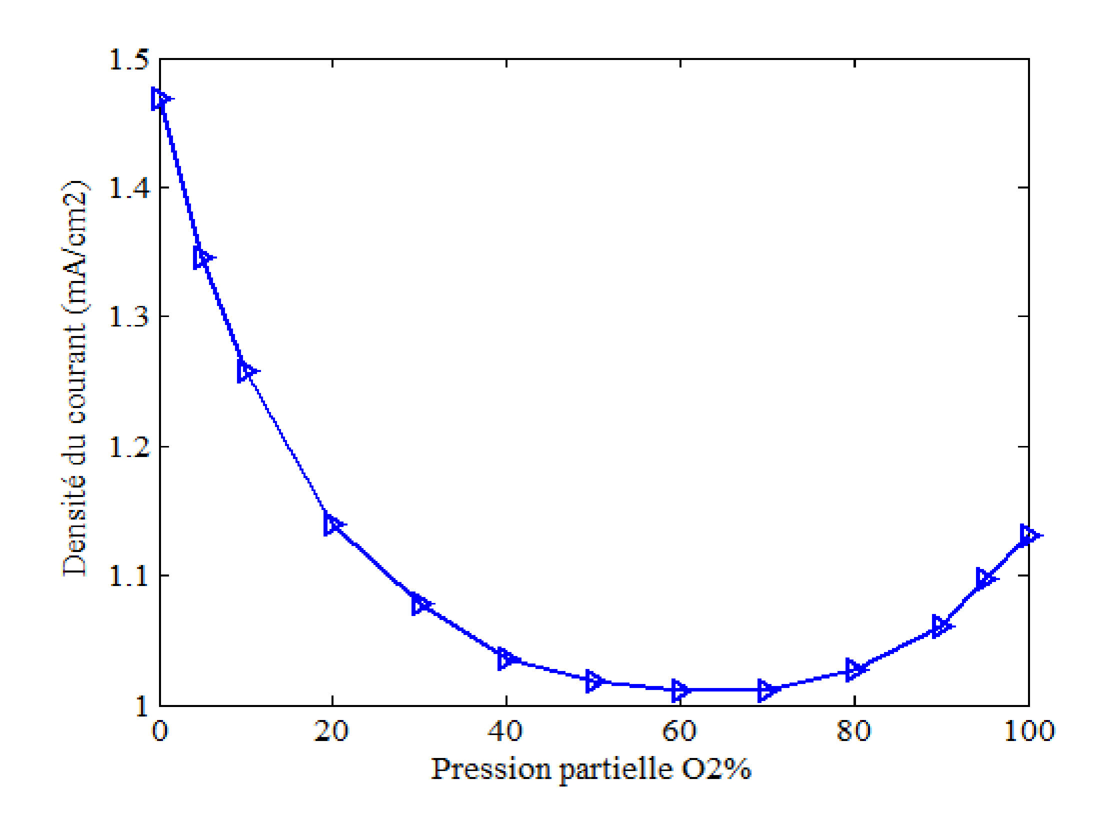


Fig. IV-22 : Variation de la densité du courant total dans la décharge

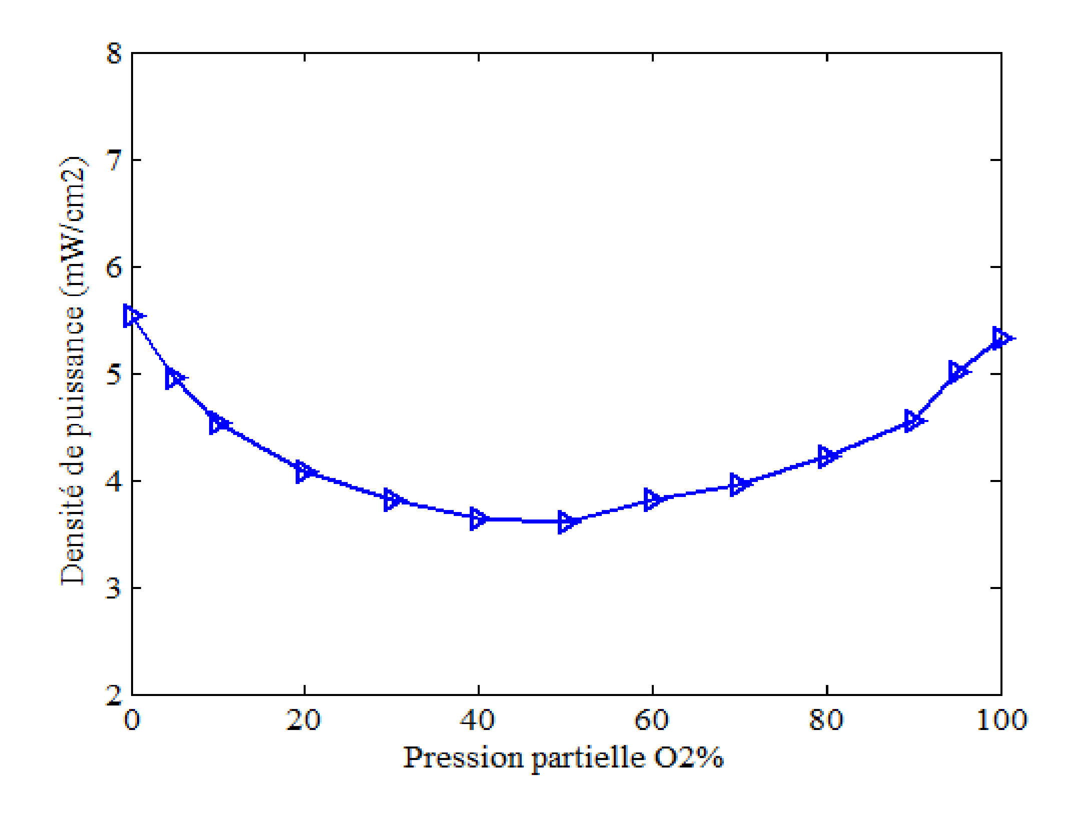


Fig. IV-23 : Variation de la densité de puissance dans le mélange Argon-Oxygène

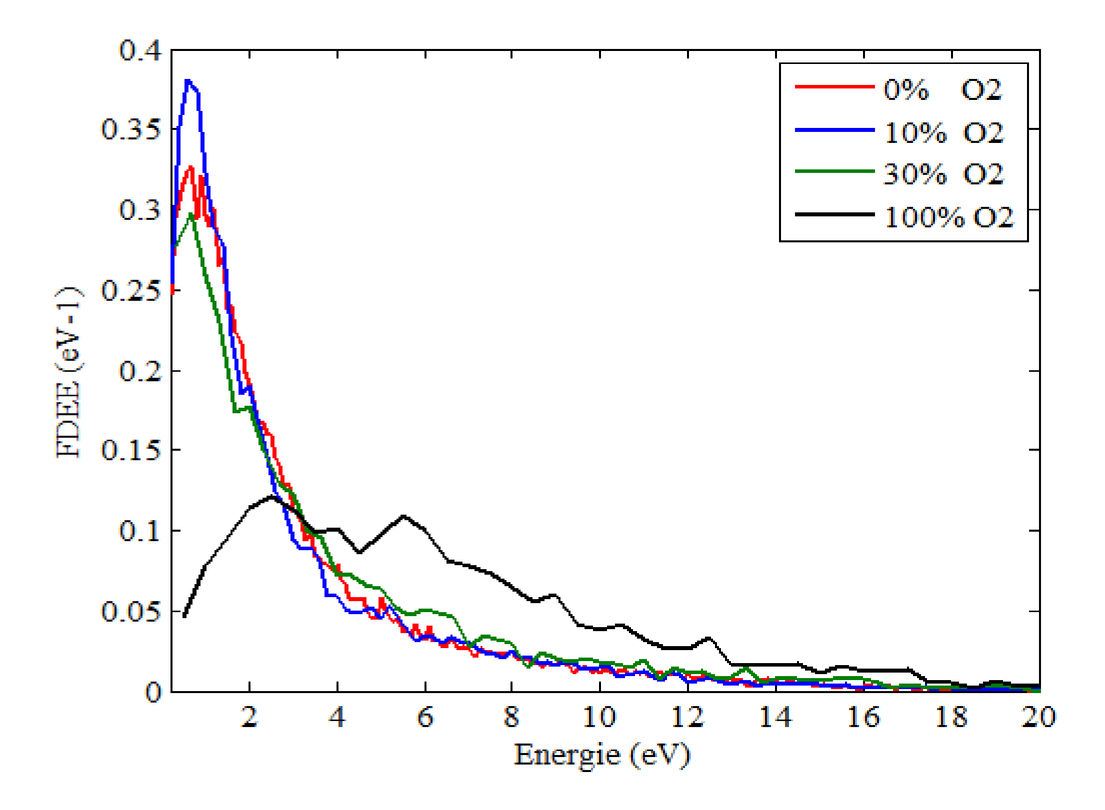


Fig. IV-24 : Fonction de distribution des énergies électroniques dans le plasma

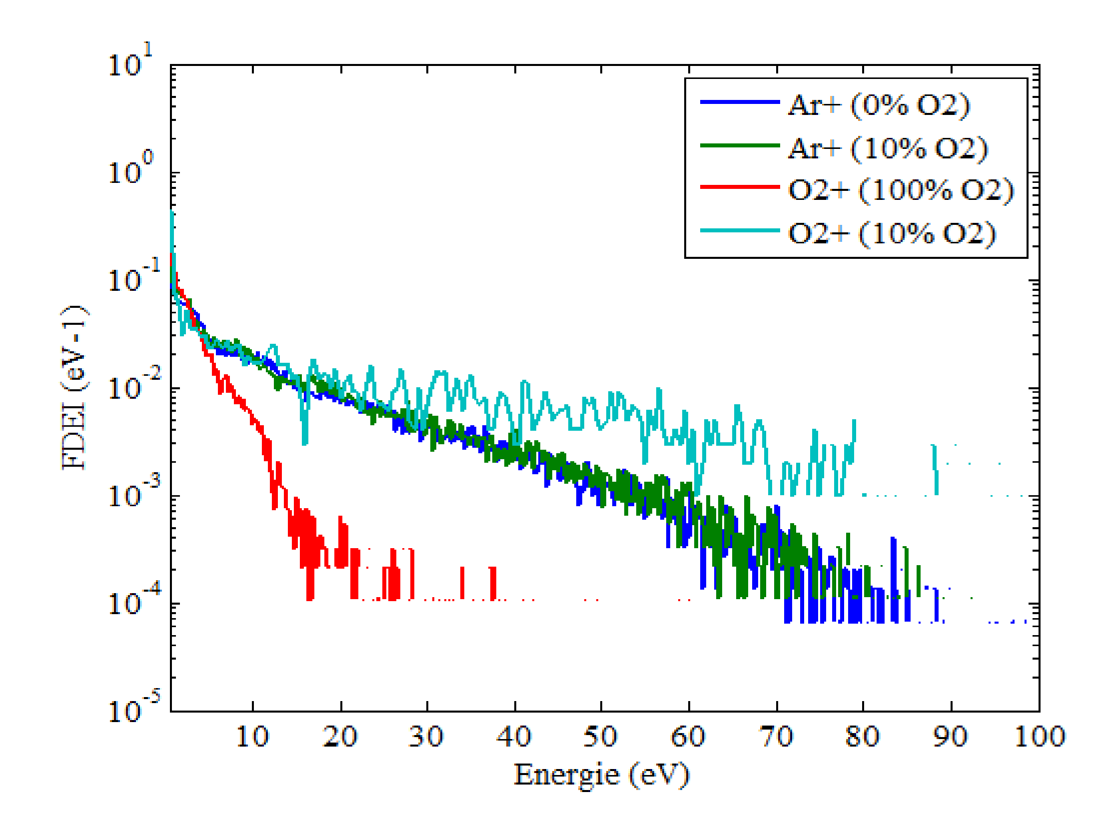


Fig. IV-25 : Fonction de distribution des énergies ioniques au voisinage de la cathode

IV.4 Résultats dans le mélange Ar-O_2 avec champ magnétique

Pour avoir un flux ionique arrivant à la cathode avec une énergie suffisante pour la pulvérisation de la cible par exemple en céramique, il est indispensable dans les décharges RF classiques de baisser la pression du gaz de l'ordre de quelques milli-torrs ou de quelques dizaines de milli-torrs. Dans ces conditions de pression, le milieu est peu collisionnel avec une densité plasma plutôt faible. Pour augmenter la densité du plasma, il est important d'appliquer un champ magnétique qui change les trajectoires des électrons d'une forme parabolique à une forme hélicoïdale. Cela va augmenter le nombre de collisions et aussi confiner les électrons. Par suite, cela augmentera aussi la densité et le flux ionique et donc l'efficacité de la pulvérisation.

IV.4.1 Mouvement d'une particule chargée dans champ électrique et magnétique

En présence d'un champ électrique et magnétique, la force exercée sur une particule de masse M et de charge e et de vitesse V est donnée par l'expression suivante :

$$\vec{F} = e\left(\vec{E}+\vec{V}\times\vec{B}\right) = M\frac{d\vec{V}}{dt} \quad \text{(IV-8)}$$

La solution des équations du mouvement des particules chargées dans un champ électromagnétique à été trouvé par une méthode des différences finies, utilisant la discrétisation de la différence finie centrale [Na-1], à l'instant *i* elle donnée par :

$$M\frac{V_{i+1/2}-V_{i-1/2}}{\Delta t} = e\left(\vec{E}+\vec{V}_i\times\vec{B}\right) \quad \text{(IV-9)}$$

Dans cette thèse, les trajectoires des particules chargées dans un champ électromagnétique sont calculées analytiquement, cela permet de trouver les positions et les vitesses exactes après chaque pas en temps.

soit $\vec{B}=B.\vec{N}$ et $\vec{V}_o$:la vitesse initiale, $\vec{r}_0$ la position initiale et $\omega=\frac{eB}{M}$: pulsation cyclotron

La vitesse après un pas du temps Δt est donnée par la relation :

$$\begin{aligned}\vec{V}=\vec{V}_o+\frac{e\Delta t}{M}\vec{E}-\sin(\omega\Delta t).\vec{N}\times\vec{V}_o-\left[\cos(\omega\Delta t)-1\right].\vec{N}\times(\vec{N}\times\vec{V}_o)\\ +\frac{1}{B}\left[\cos(\omega\Delta t)-1\right].\vec{N}\times\vec{E}\\ -\frac{1}{B}\left[\sin(\omega\Delta t)-\omega\Delta t\right].\vec{N}\times(\vec{N}\times\vec{E})\end{aligned} \quad \text{(IV-10)}$$

La position après un pas du temps Δt est donnée par la relation :

$$\begin{aligned}\vec{r}=\vec{r}_o+\vec{V}_o\Delta t+\frac{e\Delta t^2}{2.M}\vec{E}+\frac{1}{w}\left[\cos(\omega\Delta t)-1\right].\vec{N}\times\vec{V}_o-\frac{1}{w}\left[\sin(\omega\Delta t)-\omega\Delta t\right].\vec{N}\times\\ (\vec{N}\times\vec{V}_o)+\frac{1}{\omega B}\left[\sin(\omega\Delta t)-\omega\Delta t\right].\vec{N}\times\vec{E}\\ +\frac{1}{\omega B}\left[\cos(\omega\Delta t)-1+\frac{1}{2}\omega^2\Delta t^2\right].\vec{N}\times(\vec{N}\times\vec{E})\end{aligned} \quad \text{(IV-11)}$$

Le sens de rotation est donné par le signe de ω. à chaque instant et le rayon de l'orbite R est déterminé par la relation suivante :

$$R=\frac{1}{\omega}\left|\vec{N}\times\vec{V}\right| \qquad \text{(IV-12)}$$

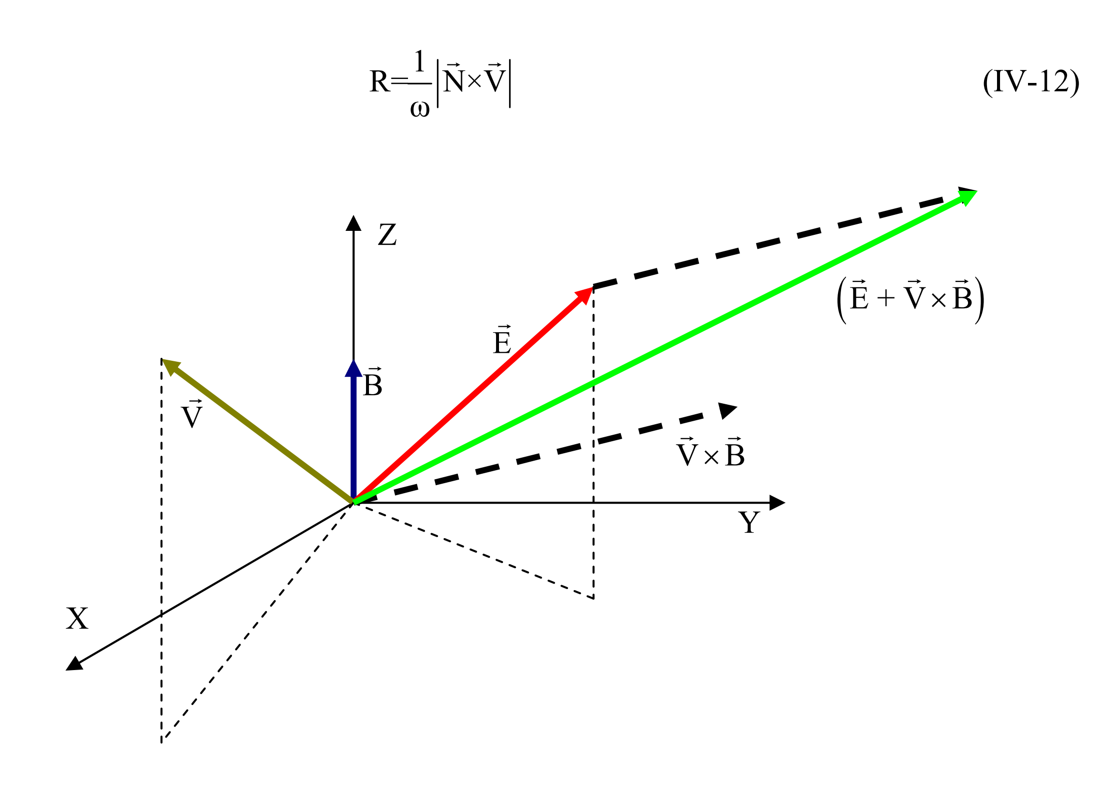


Fig. IV-26 : Direction de la force exercée sur une particule chargée dans un champ électrique et magnétique

Les figures suivantes illustrent quelques exemples de la trajectoire d'un électron dans champ électrique et magnétique.

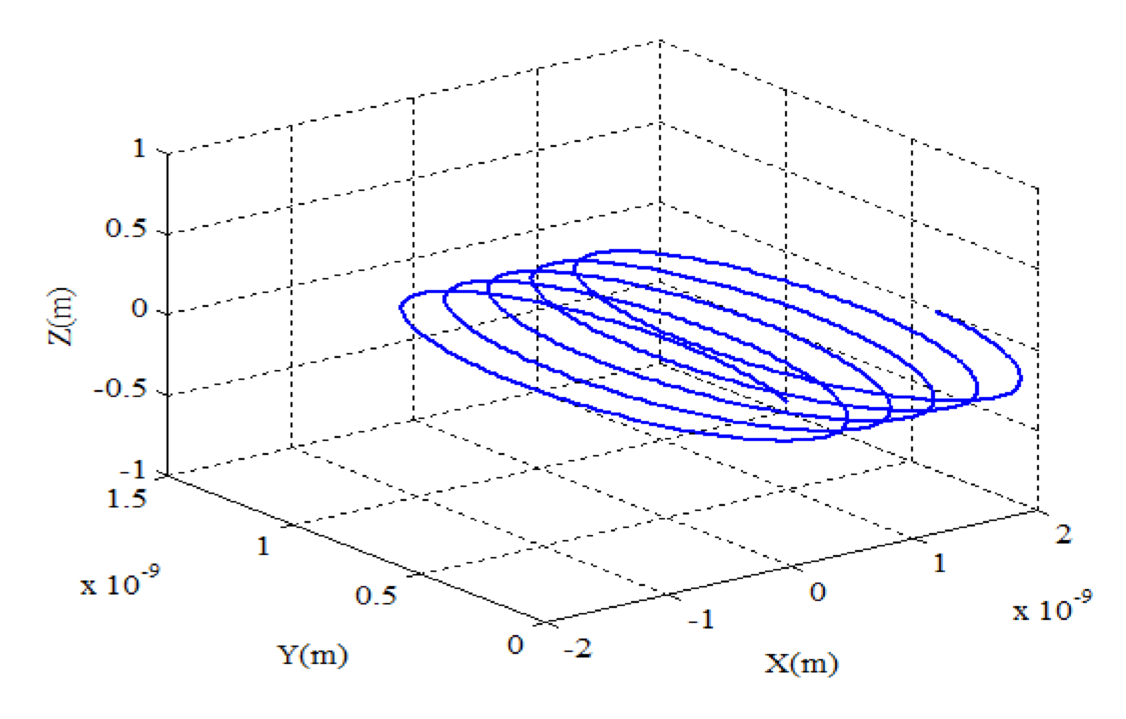


Fig. IV-27 :Trajectoire d'un électron dans un champ électromagnétique [E = (0, 10.cos (2πt), 0) V/m, B = (0, 0, 1) T, et V_0 = (10^2, 10^2, 0) m/s et r_0 = (0, 0, 0)], f =13.56×10^6

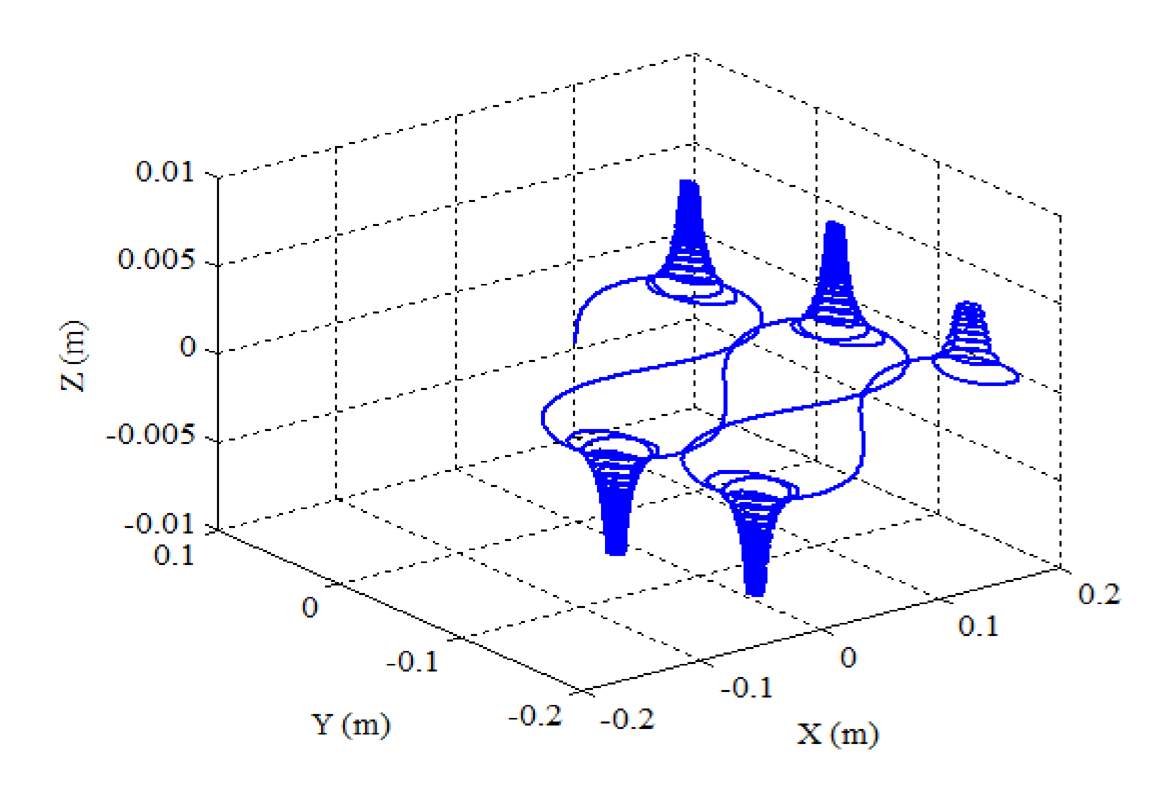


Fig. IV-28 : Trajectoire d'un électron dans un champ électromagnétique [E = (0, 0, 10 Z) V/m, B = (0, 0, -0.2 Z) Tesla, et $V_0 = (10^6, 10^6, 10^4)$ m/s et $r_0 = (0, 0, 0)$].

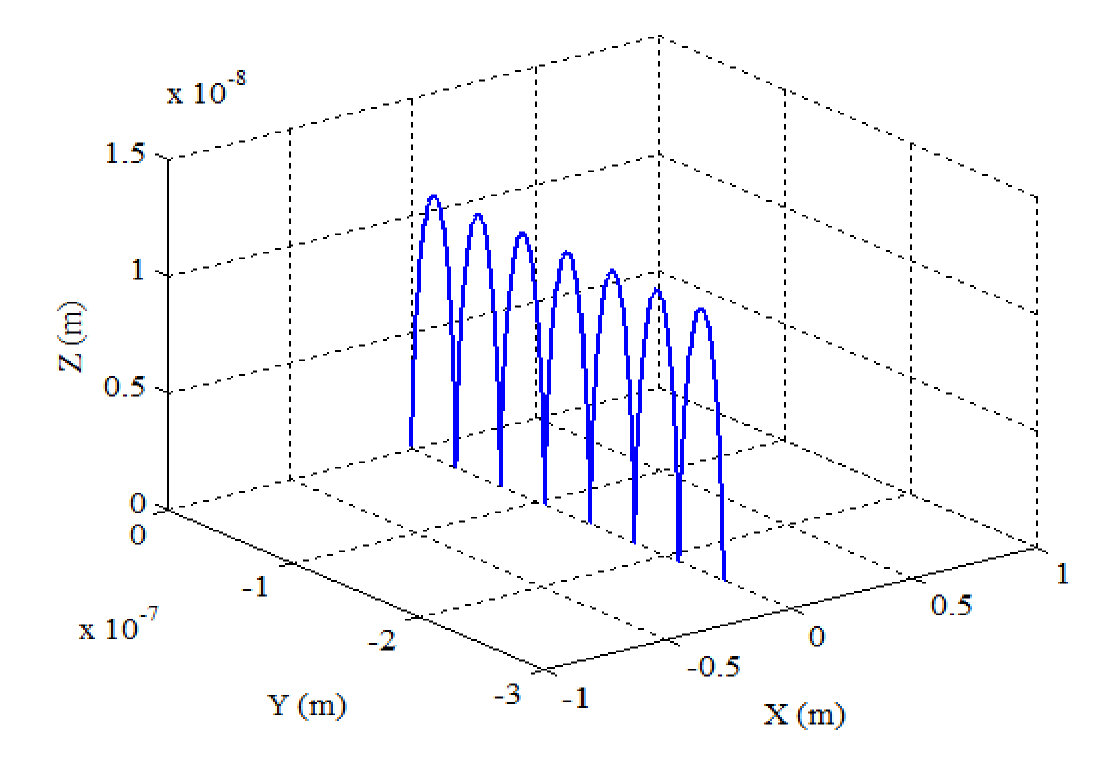


Fig. IV-29 : Trajectoire d'un électron dans un champ électromagnétique [E = (0, 0, -1000) V/m, B = (1, 0, 0) Tesla, et $V_0 = (0, 0, 0)$ m/s et la position initiale $r_0 = (0, 0, 0)$]

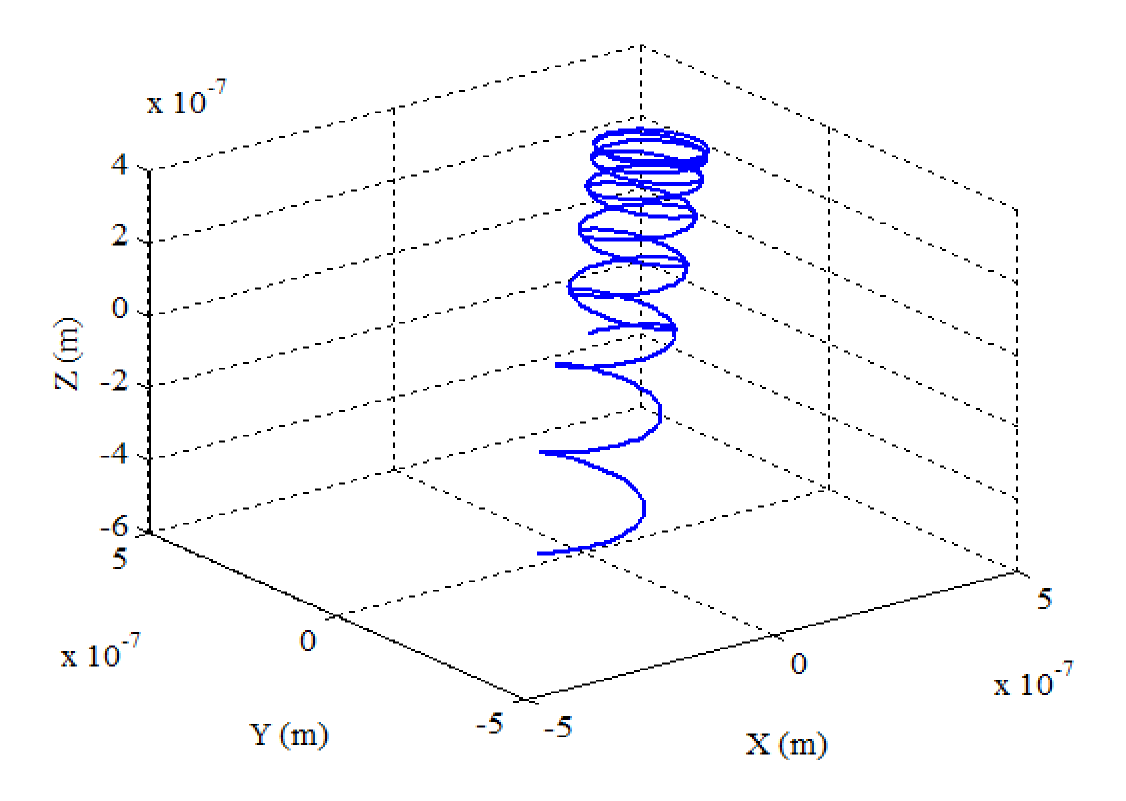


Fig. IV-30 : Trajectoire d'un électron dans un champ électromagnétique [E = (100, 100, 100) V/m, B = ($\sqrt{3}$, $\sqrt{3}$, $\sqrt{3}$) T, et V_0 = (10^4, -10^4, 10^4) m/s et r_0 = (0, 0, 0)] .

IV.4.1 Caractéristiques de la décharge dans le mélange Ar/O_2 pour un champ électrique et un champ magnétique croisés

Dans le cas où le champ électrique est dirigé suivant l'axe z et le champ magnétique est dirigé suivant l'axe y (qui est le cas considéré dans cette thèse) les équations du mouvement en cordonnées cartésiennes deviennent :

$$\begin{pmatrix} v_x(\Delta t) \\ v_y(\Delta t) \\ v_z(\Delta t) \end{pmatrix} = \frac{E}{B}\begin{pmatrix} 1-\cos\omega\Delta t \\ 0 \\ \sin\omega\Delta t \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \cos\omega\Delta t & 0 & \sin\omega\Delta t \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin\omega\Delta t & 0 & \cos\omega\Delta t \end{pmatrix}\begin{pmatrix} v_{x0} \\ v_{y0} \\ v_{z0} \end{pmatrix} \quad \text{(IV-12)}$$

$$\begin{pmatrix} x(\Delta t) \\ y(\Delta t) \\ z(\Delta t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} x_0 + \frac{E\Delta t}{B} - \frac{E}{B\omega}\sin\omega\Delta t \\ y_0 \\ z_0 - \frac{E}{B\omega}(\sin\omega\Delta t - 1) \end{pmatrix} + \frac{1}{\omega}\begin{pmatrix} \sin\omega\Delta t & 0 & 1-\cos\omega\Delta t \\ 0 & \omega\Delta t & 0 \\ \cos\omega\Delta t - 1 & 0 & \sin\omega\Delta t \end{pmatrix}\begin{pmatrix} v_{x0} \\ v_{y0} \\ v_{z0} \end{pmatrix} \quad \text{(IV-13)}$$

Où v_{x0}, v_{y0}, v_{z0} *et* x_0, y_0, z_0 sont respectivement les composantes de vecteurs vitesse initiale et les composantes de vecteur position initiale.

Les résultats sont obtenus, pour une tension radiofréquence de 200V à 13.56MHz et une pression totale du gaz de 50 mTorr avec un espace inter-électrode de 2.54 cm et pour un mélange composé de 90% d'argon et 10% d'oxygène.

Les caractéristiques de la décharge radiofréquence pour un champ magnétique de 50 Gauss qui sont représentées sur les figures suivantes sont : la variation des densités entre les électrodes, et le champ électrique (figure (IV-31) et figure (IV-32)). Les densités sont très importantes au centre de la décharge en comparaisons avec les densités obtenues sans champ magnétique. Où la densité des ions Ar^+ atteint une valeur de 1.37×10^{10} cm^{-3}, la densité des électrons, la densité des ions négatifs O^- et la densité des ions positifs d'oxygène O_2^+ atteint respectivement les valeurs 1.11×10^{10}, 4.78×10^9 et 2.64×10^9 cm^{-3}. L'augmentation des densités peut être expliquée par l'effet du champ magnétique, qui a comme rôle de faire séjourner les électrons plus longtemps dans la décharge électrique, et aussi de les confiner avant qu'ils ne soient collectées, ou qu'ils ne soient recombinent avec les électrodes. Ce phénomène permet de multiplier les espèces chargées que soit par ionisation (production des ions positifs Ar^+ et O_2^+) ou par attachement dissociatif (production des ions négatifs O^-).

Avec l'augmentant de la valeur du champ magnétique, les résultats obtenus montrent que les densités des espèces chargées augmentent d'une manière générale. Mais à partir de 10 Gauss, la densité électronique et la densité des ions Ar^+ montrent une augmentation significative et rapide (variation non-linéaire [Ko-1]) par rapport la densité de O_2^+ et la densité de O^-, ces deux dernières densités commencent de saturer (fig. IV-33). Cela peut être expliqué par l'efficacité du processus de recombinaison entre ces deux espèces. Le flux des ions positifs Ar^+ présente aussi une augmentation significative à partir de 10 Gauss (fig. IV-34) en raison de l'augmentation de la densité de cette espèce. Cependant, la fonction de distribution en énergie des ions positifs d'argon (Ar^+) au voisinage de la cathode, ne présente aucun changement entre 0 Gauss et 50 Gauss (fig. IV-35) ce qui est assez attendu car l'effet du champ magnétique est de changer les trajectoires des particules chargées sans apport d'énergie.

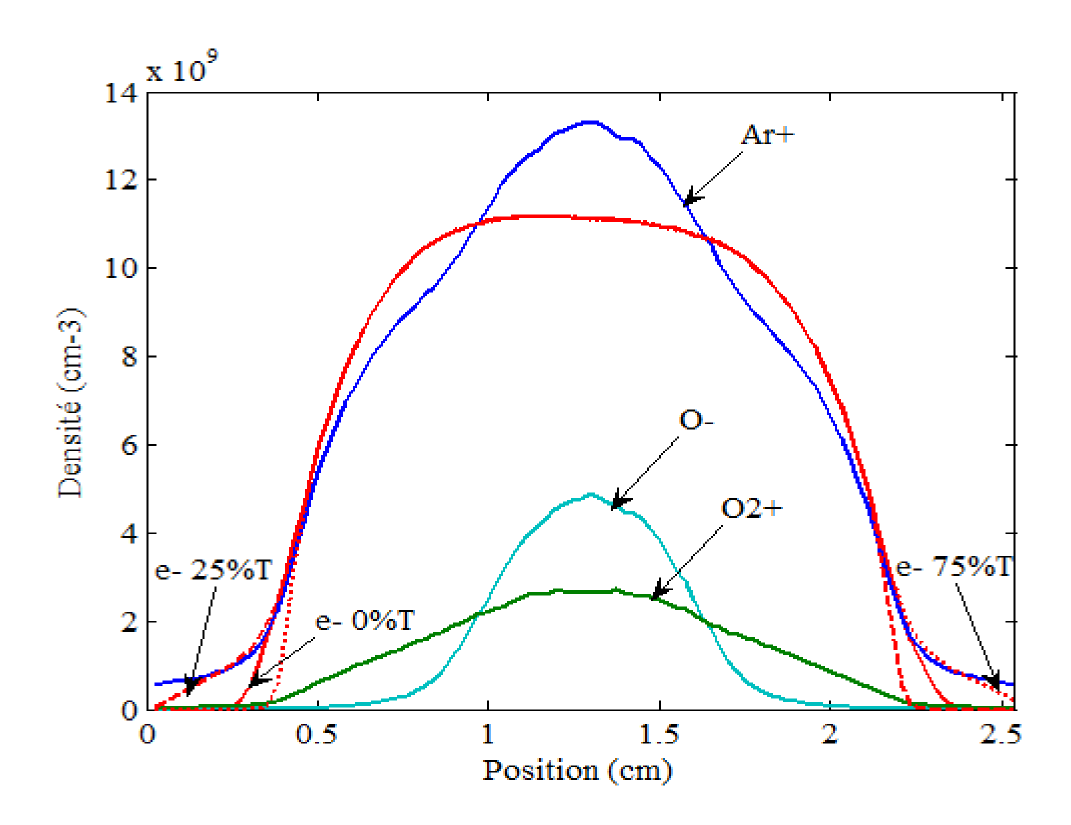


Fig. IV-31 : Variation spatiale des densités des particules chargées pour (B=50 G) à différents instants du cycle RF

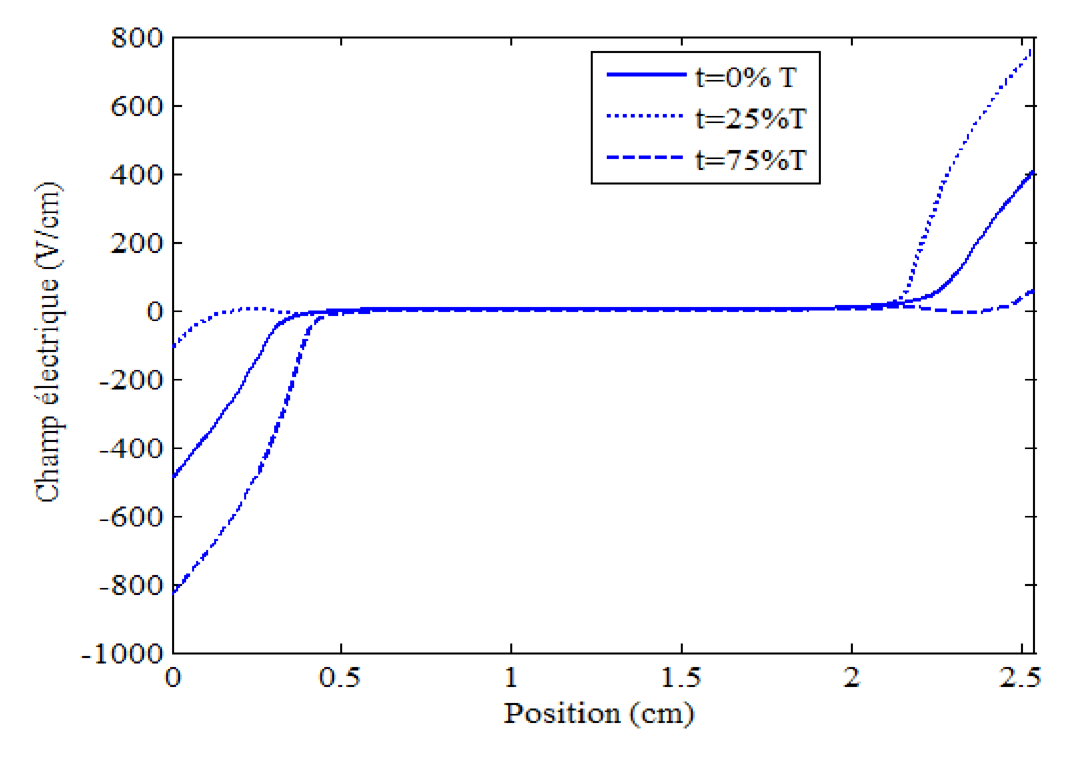


Fig. IV-32 : Variation spatiale de champ électrique pour (B=50 G) à différents instants du cycle RF

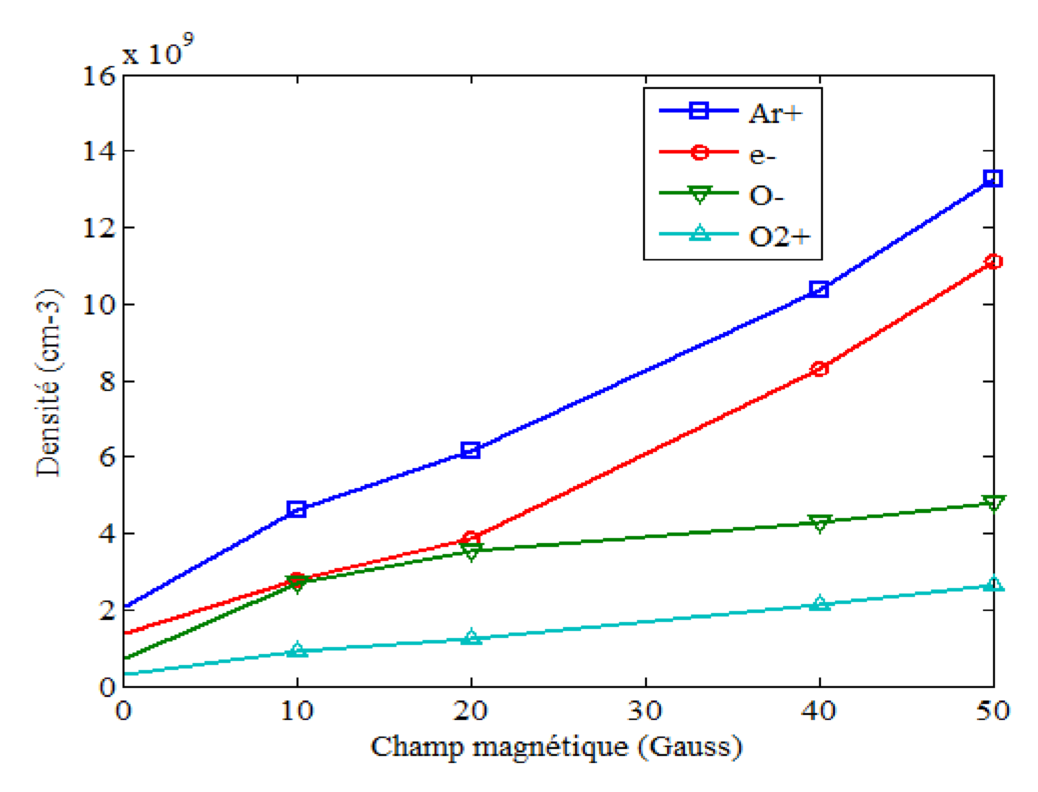


Fig. IV-33 : Variation de la densité des particules chargées au centre de la décharge en fonction du champ magnétique (Gauss)

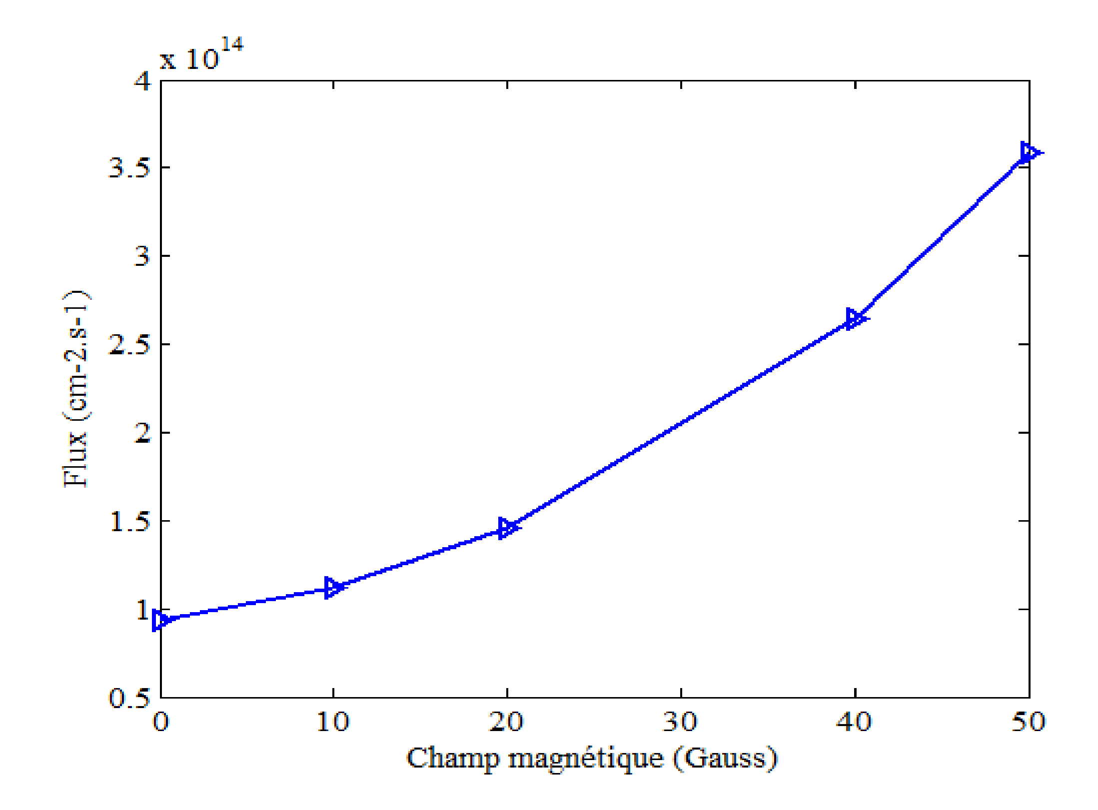


Fig. IV-34 : Variation du flux au voisinage de la cathode des ions Ar^+ en fonction du champ magnétique (Gauss)

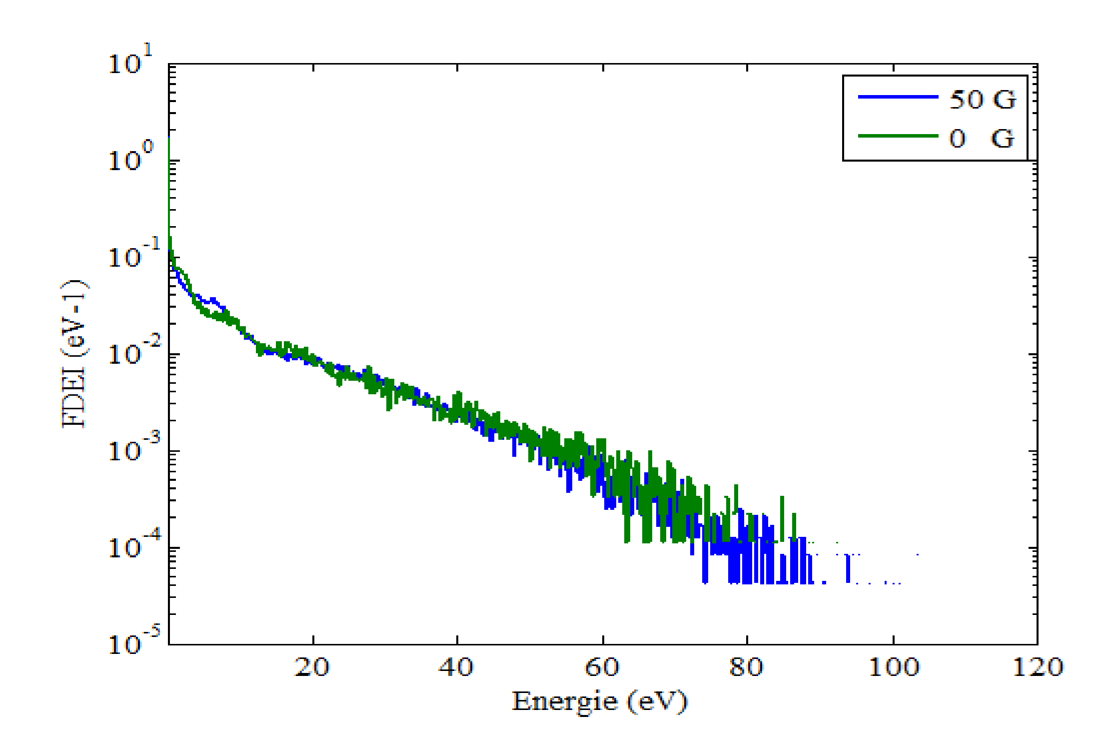


Fig. IV-35 : Fonction de distribution des énergies ioniques au voisinage de la cathode

IV.5 Conclusion

Un modèle particulaire (PIC/MC) pour le traitement des collisions a été développé pour étudier les processus physiques dans une décharge RF de type magnétron dans un mélange Ar/O_2. Les espèces du plasma pris en compte sont les électrons (e^-), les ions positifs d'argon Ar^+, les ions positifs d'oxygène (O_2^+) et les ions négatifs dissociés (O^-) qui sont, selon la littérature, les espèces chargées les plus influentes dans un mélange de gaz Ar/O_2 à basse pression.

Les caractéristiques du plasma ont été analysées pour des diverses proportions du mélange Ar/O_2 allant Argon pur jusqu'à l'Oxygène pur. On a montré que l'énergie moyenne des électrons passe par une valeur minimale pour une concentration de 10% d'oxygène.

Au dessous d'une concentration de 10% d'oxygène, la majorité des électrons sont dans la partie du corps de la fonction de distribution de l'énergie. Les électrons deviennent plus en plus énergétiques avec l'augmentation de la concentration d'oxygène. On a montré aussi que le transfert de la charge résonant est plus important dans l'oxygène que dans

l'argon, où l'énergie moyenne des ions positifs d'oxygène au voisinage de la cathode dans le cas de l'oxygène pur, est très faible par rapport à celle des ions positifs dans le cas d'argon pur.

En présence de champ magnétique et pour un mélange 90%Ar/10%O_2, la densité des électrons et la densité des ions d'argon (Ar^+) augmente plus rapidement que la densité des ions O_2^+ et la densité de O^- à partir de 10 Gauss. En outre, la fonction de distribution des énergies ioniques au voisinage de la cathode pour les ions Ar^+, ne présente aucune variation significative avec l'augmentation du champ magnétique jusqu'à 50 Gauss.

CONCLUSION GENERALE

Dans cette thèse on a développé un modèle particulaire auto-cohérent basé sur le libre parcours pour le traitement des collisions dans le cas d'un seul gaz et le cas d'un mélange. Ce modèle est appliqué pour une décharge radiofréquence unidimensionnel et multidimensionnels avec configuration cylindrique. Le modèle permet de faire le couplage avec le circuit extérieur à travers d'une capacité de blocage. Il nous permet aussi, de résoudre les équations hydrodynamiques d'une manière indirecte où la fermeture des moments de l'équation de Boltzmann est à l'infini ; autrement dis, c'est la résolution de l'équation de Boltzmann sans tenir compte l'approximation du champ local ou l'approximation de l'énergie locale.

Dans le premier chapitre nous avons présenté une approche très simple de la phénoménologie de la décharge électrique et le plasma réactif. La description des décharges luminescentes et les décharges radiofréquences et leurs caractéristiques et propriétés fond aussi un objectif de ce chapitre. Afin de donné un aperçu général sur les différents modèles (cinétique, particulaire, fluide et hybride). Espérant que les lecteurs puissent situer et comprendre les prochains chapitres.

Le deuxième chapitre a fait l'objet de développement d'un modèle particulaire auto cohérent appliqué aux décharges radiofréquences unidimensionnelles (cas d'une décharge symétrique) et multidimensionnelles (cas d'une décharge asymétrique). Où on a détaillé le modèle particulaire développé dans cette thèse. Ce modèle s'agit de coupler l'équation de Poisson et la méthode de Monte Carlo. Où l'équation de Poisson permet de calculer la distribution spatio-temporelle du champ électrique. En revanche, la méthode de Monte Carlo permet de traiter les collisions de chaque particule chargée. Dans ce modèle on a basé sur le calcul du libre parcours pour but d'optimiser le temps de calcul. Ce modèle particulaire permet de déterminer les caractéristiques électriques de la décharge étudiée.

Le modèle qu'est décrit dans ce chapitre était appliqué au chapitre trois pour une décharge radiofréquence dans l'argon dans le cas symétrique et asymétrique. Après on a comparé les résultats obtenus par le calcul aux datas expérimentaux existant dans la littérature afin de valider notre modèle.

Le modèle PIC MC, basé sur l'estimation du parcours libre, développé dans le cadre de cette thèse, montre que les résultats calculés correspondent aux résultats expérimentaux. Ce qui valide le modèle. On à montré aussi dans le chapitre trois la validité des sections efficaces utilisées. Notamment, les sections efficaces ioniques (Ar^+), qui sont calculées à partir du potentiel d'interaction entre l'ion Ar^+ et l'atome Ar.

Le modèle montre également, un grand nombre de collisions effectuées par les électrons qui arrivent de la gaine vers le cœur de la décharge, ces collision sont maximum à la lisière gaine-plasma. Ce phénomène peut être expliqué par la diminution progressive de l'énergie moyenne des électrons arrivant de la gaine vers le centre du plasma. La fonction de distribution d'énergie d'électrons (FDEE) calculée par ce modèle d'argon, présente une déviation à la distribution maxwellienne ; cet écart est inversement proportionnel à la pression du gaz. Cela montre l'utilité du modèle particulaire pour la simulation des plasmas crées par décharges électriques à basse pression. Enfin, le modèle proposé permet de réduire au maximum les collisions nulles, cela réduit le temps de calcul.

Dans le chapitre quatre on a étudie une décharge radiofréquence dans un mélange Argon-Oxygène, et cela en absence du champ magnétique. Après, un modèle particulaire (PIC/MC) pour le traitement des collisions a été développé pour étudier les processus physiques dans une décharge magnétron dans un mélange Ar/O_2. Les espèces du plasma pris en compte sont les électrons (e^-), les ions positifs d'argon Ar^+, les positifs d'oxygène (O_2^+) et les ions négatifs (O^-). D'après plusieurs auteurs sont les particules chargées principales dans un mélange de gaz Ar/O_2 à basse pression.

On a montré dans le dernier chapitre, les caractéristiques du plasma pour des rapports de concentrations varient de 0% à 100% (Argon pur et Oxygène pur). Où on a trouvé que l'énergie moyenne des électrons atteint le minimum pour une concentration de 10% d'oxygène. Au dessous de cette concentration la majorité des électrons sont dans la partie du corps de la fonction de distribution de l'énergie. Puis, ils deviennent plus en plus énergétiques avec l'augmentation de la concentration d'oxygène. On à montré aussi que le transfert de la charge résonant est plus important dans l'oxygène que dans l'argon, où l'énergie moyenne des

ions positifs d'oxygène au voisinage de la cathode dans le cas de l'oxygène pur, est très faible à celle des ions positifs dans le cas d'argon pur.

La fonction de distribution des énergies ioniques au voisinage de la cathode pour les ions Ar^+, ne présente aucune variation significative avec l'augmentation de la concentration d'oxygène jusqu'à 10%.

En présence de champ magnétique et pour un mélange 90%Ar/10%O_2, la densité des électrons et la densité des ions d'argon (Ar^+) augmente plus rapidement que la densité des ions O_2^+ et la densité de O^- à partir de 10 Gauss. En outre, la fonction de distribution des énergies ioniques au voisinage de la cathode pour les ions Ar^+, ne présente aucune variation significative avec l'augmentation du champ magnétique jusqu'à 50 Gauss.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[Al-1] A. Alkaa, "*Etude des fonctions de distribution des électrons dans les plasmas froids composés de mélanges de gaz rares avec des vapeurs métalliques ou des gaz électronégatifs'',* thèse université Paul Sabatier, 1991.

[Ab-1] A. A. Abrahamson, *"Born-Mayer-Type interatomic potential for neutral ground gaseous-state atoms with Z=2 to Z=105", Phys. Rev.* 178 (1), 76, 1969.

[Ag-1] R. d'Agostino, P. Favia, Y. Kawai, H. Ikegami, N. Sato, F. Arefi-Khonsari,"*Advanced Plasma Technology''*,

[Ba-1] P. Banks, *"Collision frequencies and energy transfer: ions", Planet. Space Sci*. 14, 1105, 1966.

[Be-1] D. Benyoucef, M. Yousfi, B. Belmadani, A. Settaouti, '*PIC MC Using Free Path for the Simulation of Low Pressure RF Discharge in Argon*', *IEEE Trans.on Plasma Science,* 38, 4, 902, 2010.

[Be-2] D. Benyoucef, M. Yousfi, B. Belmadani, '*RF discharge characteristics from particle model based on two optimized Monte Carlo methods for collision treatment*', ICPIG Cancun 13-18July, 2009.

[Bi-1] C. K. Birdsall, *"Particle-in-cell charged-particles simulations, plus Monte Carlo collisions with neutral atoms, PIC-MCC", IEEE Trans. Plas. Sci*., 19, 65, 1991.

[Bl-1] P. Bletzinger and A. Garscadden, ''*IEEE Conference on Plasma Science''*, Williamsburg, VA, June 3–5, 1991.

[Br-1] B. Brunetti, G. Liuti, E. Luzzati, F.Pirani, F. J. Vecchiocattivi, '' *Study of the interactions of atomic and molecular oxygen with O_2 and N_2 by scattering data*, *J. Chem. Phys.* 74 , 6734, 1981.

[Ca-1] R.J. Carman, *"A simulation of electron motion in the cathode sheath region of a glow discharge in argon", J. Phys. D : Appl. Phys*. 22, 55, 1989.

[Ch-1] B. N. Chapman, '*Glow Discharge Processes: Sputtering and Plasma Etching'*, New York, 1980.

[Cr-1] W. H. Cramer, *"Elastic and inelastic scattering of low-velocity ions: Ne+ in Ar, Ar+ in Ne, and Ar+ in Ar", J. Chem. Phys.* 30 (3), 641, 1959.

[De-1] J. L. Delcroix et A. Bers, '*physique des plasmas*', Tome 1, Paris, 1994.

[De-2] F.J. DeHeer, R.H. Hansen et W. Van_der_Kaay, *"Total cross sections for electrons scattering by Ne, Ar, Kr and Xe", J. Phys. B : At. Mol. Phys.* 12 (6), 979, 1979.

[Me-3] J.M MEXMAIN , *''Coefficients de transport dans un plasma à deux températures: application au mélange argon-oxygène*'', thèse de 3eme cycle, Limoges, 1983.

[Dr-1] M. J. Druyvesteyn and F. M. Penning, '*The Mechanism of Electrical Discharges in Gases of Low Pressure*', *Rev. Mod. Phys*., 12(2), 87, 1940.

[Du-1] T. H. Dunning, J. J. Hag, ''*Low - lying electronic states of the rare gas oxides'', J. Chem. Phys.* 66, 3767, 1977.

[Eg-1] E. Eggarter, *"Comprehensive optical and collision data for radiation action. II. Ar*", J. Chem. Phys. 62 (3), 833, 1975.

[El-1] H.W. Ellis *et al*., *"Transport properties of gaseous ions over a wide energy range. Part I",* Atomic Data and Nuclear Data Tables 17, 177, 1976.

[Fe-1] C. M. Ferreira and J. Loueiro,' Electron energy distributions and excitation rates in high-frequency argon discharges ' *J.Phys. D*, 16, 12, 2471, 1983.

[Go-1] W. J. Goedheer, P. M. Meijer, J. Bezemer, J. D. P. Passchier and W. G. J. H. M. van Sark, "*Frequency effects in capacitvely coupled radio-frequency glow discharge: A Comparison between a 2-D fluid model and experiments*," *IEEE Trans. Plasma Science,* 23, 4, 644, 1995.

[Go-2] M. J. Goeckner, J. A. Goree et T. E. Sheridan, *"Monte Carlo simulation of ions in a magnetron plasma", IEEE Transactions on Plasma Science* 19 (2), 301, 1991.

[Gr-1] M. Grysinski, ''*Classical theory of atomic collisions. I. Theory of inelastic collisions*'', *Phys. Rev*., 138, A336, 1965.

[Gr-2] D.B. Graves, K.F. Jonsen,'' A continuum model of dc and RF discharges,'' IEEE Trans. Plas. Sci. , PS-14, 78, 1986.

[Gu-1] J.T. Gudmundsson, I. G. Kouznetsov, K. K. Patel et M. A. Lieberman,'' *Electronegativity of low-pressure hight-density oxygen discharges, J. Phys. D: Appl. Phys.,* 34, 1100, 2001.

[Ha-1] J.B. Hastel et M. A. D. Phill, '' Physics of Atomic collision'', second edition, Ed., Butterworths, London, 1972.

[He-1] J. Herec, J. Sielanko, Z. Wronski, *"Monte Carlo simulation of the concentration distribution of sputtered cathode material in glow discharge plasma*," *vaccum,* 63, 507, 2001.

[He-2] A. Hennad, '' *Cinétique des ions dans les gaz moléculaires par simulations de Monte Carlo classique et optimisée: détermination des données de base dans l'air*'', Thèse de l'université de Toulouse, 19996.

[He-3] R. Hegerberg, M. T. Elford et H. R. Skullerud, *"The cross section for symmetric charge exchange of Ne+ in Ne and Ar+ in Ar at low energies", J. Phys.* B 15, 797, 1982.

[Ho-1] Mike Hopkins, "*Langmuir probe measurements in the gaseous electronics conference RF reference cell*" *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.,* 100, 415, 1995.

[Hu-1] S. R. Hunter and L. G. Christophorou, *J. Chem. Phys*. 80, 6150, 1984.

[It-1] T.Itoh, T.Musha, " *Monte Carlo calculations of motion of electrons in helium*," *J.Phys.soc.Jpn.*, 15, 9,1675, 1960.

[Ko-1] Konstantin G. Kostov and Joaquim J. Barroso, "*Numerical Simulation of Magnetic-Field-Enhanced Plasma Immersion Ion Implantation in Cylindrical Geometry,'' IEEE Trans. Plas. Sci.* 34 (4), 1127, 2006.

[Kr-1] A.A. Kruithof, "*Townsend ionisation coefficient for neon, argon, krypton and xenon*", *Physica* , 7, 519, 1940.

[Le-1] S. H. Lee, F. Iza, and J. K. Lee,'' *Particle-in-cell Monte Carlo and fluid simulations of argon-oxygen plasma: Comparisons with experiments and validations'', Physics of Plasmas,* 13, 057102 (1-9), 2006.

[Li-1] M. A. Lieberman and A. J. Lichtenberg, "*Principles of plasma discharges and materials processing",* Second edition, New York: Wiley, 1994.

[Lo-1] L. B. Loeb, '*Electrical breakdown of gases with steady or direct current impulse Potentials', Encyclopedia of Physics,* Berlin, 1956.

[Lu-1] E. LUZZATI, F. PIRANI, F. VECCHIOCATTIVI, *''Absolute total elastic cross sections for O_2-rare gases scattering'', Mol. Phys.*, 34, 1279, 1977.

[Ma-1] G. Marsaglia and A. Zaman "*A New Class of Random Number Generators," Annals of Applied Probability"*, 3, 462, 1991.

[Ma-2] Matsumoto, M. and Nishimura, T. "*Mersenne Twister: A 623-Dimensionally Equidistributed Uniform Pseudorandom Number Generator," ACM Transactions on Modeling and Computer Simulation*, 3, 8(1), 1998.

[Ma-3] Mason E A, O'Hara H and Smith F J. "*Mobilities of polyatomic ions in gases: core model* 1972 *J. Phys. B: Atom Molec. Phys.* 5, 75, 1972

[Me-1] J. M. Meek and J. D. Craggs, 'Electrical *breakdown of gases',* Oxford, 1953.

[Me-2] J. M. Meek and J. D. Craggs, '*Gas discharge physics*', Berlin, 1991.

[Me-3] P. M. Meijer, '*The electron dynamics in RF discharges',* Ph.D. thesis, Utrecht University, 1991,

[Mi-1] H.B. Milloy, R.W. Crompton, J. Rees et A.G. Robertson, *"The momentum transfer crosssection for electrons in argon in the energy range 0-4 eV",* Aust. J. Phys. 30, 61-72 (1977).

[Mo-1] P. Morse,'' *Diatomic Molecules According to the Wave Mechanics. II. Vibrational Levels'', Phys. Rev.*, 34,57, 1929.

[Mo-2] T. F. Moran, M. R. Flannery, and P. C. Cosby,'' *Molecular charge transfer. II. Experimental and theoretical investigation of the role of incident - ion vibrational states in* O_2^+*-*O_2 *and* NO^+ *-NO collisions'', J. Chem. Phys.* 61 , 1261, 1974.

[Na-1] K Nanbu, K Mitsui and S Kondo, ''*Self-consistent particle modelling of dc magnetron discharges of an O2/Ar mixture* '', *J. Phys. D: Appl. Phys.* 33, 2274, 2000.

[Ne-1] D Nelson, M Benhenni, M Yousfi and O Eichwald, '' *Basic data of polyatomic ion–molecule systems for flue gas discharge modelling* '', *J. Phys. D: Appl. Phys.* 34, 3247, 2001.

[Ne-2] E.Neyts, M.Yan, A.Bogaerts , R.Gijbels, '' *PIC-MC simulation of an RF capacitively coupled Ar/H2 discharge'', Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.* B 202, 300, 2003.

[Ni-1] T.E. Nitschke, D.B. Graves,'' *A comparaison of particle in cell and fluid model simulation of low pressure radio frequency discharges'', J. Appl. Phys.* 76(10), 5646, 1994.

[No-1] N. Nakano, N. Shimura, Z. Lj. Petrovid, and T. Makabc, ''Simulations of rf glow discharges in SF_6 by the relaxation continuum model: Physical structure and function of the narrow-gap reactive-ion etcher'', Phys. Rev. E 49, 4455, 1994.

[Bl-1] P. Bletzinger and A. Garscadden, ''*IEEE Conference on Plasma Science''*, Williamsburg, VA, June 3–5, 1991.

[Ov-1] Lawrence J. Overzet, ''Microwave *Diagnostic Results from the Gaseous Electronics Conference RF Reference Cell'', J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.,* 100, 401, 1995.

[Pa-1] Park, S.K. and Miller, K.W. "*Random Number Generators: Good Ones Are Hard to Find," Communications of the ACM*, 31(10), 1192, 1988.

[Pa-2] J.M. PARSON, J. M., SISKA, P. E., LEE, Y. T., '' *Intermolecular Potentials from crossed - Beam Differential Elastic Scattering Measurements. IV. Ar+Ar* '' , J. *Chem. Phys.,* 56,1511, 1972.

[Pe-1] L.R. Peterson et J.E. Allen, *"Electron impact cross sections for argon", J. Chem. Phys*. 56 (12), 6068, 1972.

[Ph-1] A.V.Phelps.and Z.L.Petrovic, " *Cold-cathode discharge and breakdown in argon: surface and gas phase production of secondary electron*," *Plasma Sources Sci. Techn.*, 33, 4752, 1994.

[Ph-2] A. V. Phelps, *"The application of scattering cross sections to ion flux models in discharge sheath", J. Appl. Phys.* 76 (2), 747, 1994.

[Po-1] I. Popescu Iovitsu et N. Ionescu-Pallas, *"Resonant charge exchange and the kinetics of ions", Sov. Phys. - Tech. Phys*. 4, 781, 1960.

[Po-2] A.M. POINTU J. PERRIN, J. JOLLY,'' Plasmas froids de décharge-Application et diagnostic'', D2835, 10 nov. 1997.

[Pr-1] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky et W. T. Vetterling, "*Numerical Recipes*

Cambridge University Press'', Cambridge, 1986.

[Ra-1] K. Radouane, B. Despax, M. Yousfi, J. P. Couderc, E. Klusmann, H. Meyer, R. Schulz, and J. Schulze, " *Two-dimensional electrical modeling of asymmetric radio-frequency discharges for geometry effect analysis: comparison with experiments*," *J. App. Phys.*, 90, 9, 4346, 2001.

[Ra-2] D. Rapp et P. Englander-Golden, *"Total cross sections for ionization and attachment in gases by electron impact I. Positive ionization", J. Chem. Phys*. 43 (5), 1464, 1965.

[Ri-1] A. D. Richards, B. E. Thompson and H. H. Sawin, "*Continuum modeling of argon radio frequency glow discharge*", *Appl. Phys. Lett.,* 492, 1987.

[Sa-1] A. Salabas, '*Fluid model for charged particle transport in capacitively coupled radio-frequency discharges*', thèse de l'université de technologie de Lisbonne, 2003.

[Sa-2] Y. Sakai, H. Tagashira et S. Sakamoto, *"The development of electron avalanches in argon at high E/N values: I. Monte Carlo simulation", J. Appl. Phys*., 10, 1035, 1977.

[Sa-3] S. Sakabe et Y. Izawa, *"Simple formula for the cross sections of resonant charge transfer between atoms and their positive ions at low impact velocity", Phys. Rev.* A 45 (3), 2086, 1992.

[Sh-1] J. Shohet, '*The plasma state', Academic press, New York,* 1971.

[Sh-2] M. Shibata, N. Nakano, and T. Makabe,'' *O2 rf discharge structure in parallel plates reactor at 13.56 MHz for material processing'', J. Appl. Phys.* , 77 (12), 1995.

[Sk-1] H.R. Skullerud, "*The stochastic computer simulation of ion motion in gas subjected to constant electric field*," *J. Appl. Phys.,* D2, 1567, 1968.

[So-1] T. J. Sommerer and M. J. Kushner, "*Numerical investigation on the kinetics and chemistry of rf glow discharge plasmas sustained in He, N2, O2, He/N2/O2, He/CF4/O2, and SiH4/NH3 using a Monte Carlo-fluid hybrid model*", *J. Appl. Phys.,* 1654, 71, 1992.

[To-1] J. S. Townsend, *'Electricity in Gases', Clarendon Press,* Oxford, 1915.

[Tr-1] H.W. Trombley, F.L. Terry, M.E. Elta, '' *A self–Consistent particle model for the simulation of RF Glow discharges*'', *IEEE, Trans. Plas. Sci.* 19(2), 158, 1991.

[Va-1] V. Vahedi and M. Surenda, "*A Monte Carlo collision model for the particle-in-cell method: Application to argon and oxygen discharge*," *Comput. Phys. Commun.*, 87, 1,2, 179, 1995.

[Va-2] V. Vahedi, C. K. Birdsall, M. A. Lieberman, G. DiPeso, and T. D. Rognlien, '*Verification of frequency scaling laws for capacitive radio - frequency discharges using two - dimensional simulations, Phys. Fluids* , 5, 7, 2719, 1993.

[Ve-1] M. H. L. van der Velden, W. J. M. Brok, J. J. A. M. van der Mullen, W. J. Goedheer, and V. Banine, " *Particle-in-cell Monte Carlo simulations of an extreme ultraviolet radiation driven plasma*," *Phys. Rev.,* E 73, N. 036406 , 2006.

[Yo-1] M.Yousfi, A. Hennad and A. Alkaa, "*Monte Carlo simulation of electron swarms at low reduced electric fields*," *Phys. Rev.,* E, 49, 4, 3264, 1994.

[Yo-2] M. Yousfi, A. Hennad, O. Eichwald, ‘’ *Improved Monte Carlo method for ion transport in ion-molecule asymmetric systems at high electric fields, J. Appl. Phys*., 84, 107, 1998.

[Yo-3] S. Yonemura et K. Nanbu,’’ *Self-Consistent Particle-in-Cell/Monte Carlo Simulation of RF Magnetron Discharges of Oxygen/Argon Mixture: Effects of Partial Pressure Ratio’’, IEEE, Trans. Plas. Sci.,*31, 4, 479, 2003.

[Yu-1] Yukikazu Itikawa, ‘’ Cross Sections for Electron Collisions with Oxygen Molecules’’, J. Phys. Chem. Ref. Data, Vol. 38, No. 1, 1-20, 2009.